

Title	遍歴電子磁性体におけるスピンのゆらぎ(講義ノート)
Author(s)	高橋, 慶紀
Citation	物性研究 (2000), 75(1): 1-38
Issue Date	2000-10-20
URL	http://hdl.handle.net/2433/96898
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	publisher

講義ノート

遍歴電子磁性体におけるスピンのゆらぎ

姫路工業大学理学部
高橋 慶紀

(2000 年 8 月 3 日受理)

高温超伝導や重い電子系を代表とする強相関電子系の研究は、現在の物性物理における最も重要なテーマの一つである。電子相関によって物質はこれらの多様な物性を示すことが知られているが、その中でも金属における磁性、遍歴電子磁性は私達が良く知っている Fe や Ni、Co などにも見い出されるようにとても身近な性質である。しかしその理論的な理解について見ると古くから研究されてきているにも関わらず未だに解決されていないことが多く、他の強相関系の問題と同様に非常に難しい問題となっている。この講義ノートでは主に遷移金属やそれらを含む化合物の遍歴電子磁性を対象とし、特に SCR 理論が提出されてから後の最近約十年間の理論研究の展開について、量子スピンゆらぎの効果などを中心に述べる。

参考書

1. 安岡、川畑編 : 遍歴電子系の磁性と超伝導 (裳華房、1992) 第 4 章
2. 安達健五 : 化合物磁性 遍歴電子系 (裳華房、1996)

1 はじめに

磁性体はそのほとんどが磁性原子として遷移金属、稀土類元素、アクチナイド元素を含んでいる。これらの元素が磁性を発現する理由は、原子の中の d-電子、f-電子が結晶中でも比較的原子の内部領域に分布するために化学結合性が弱く不対電子のままで存在しやすいためである。結合性が弱いために必然的にバンド幅が狭く有効質量の重い電子状態が生じるので、電子相関が極めて重要となり、また各磁性原子位置でのスピンは比較的良い量子数のままに保たれる。結晶中の原子の磁性に関与する相互作用のうち重要なものとして、クーロン相互作用、結晶場効果、スピン軌道相互作用が挙げられ、それらの相互作用の強さはだいたい下の表に示されるような値になっている。遷移金属、稀土類元素、アクチナイド元素でこれらの三つの相互作用の相対的な大きさが異なることが、それらを含む磁性体の磁性に質的な違いをもたらす原因となっている。

	クーロン相互作用	結晶場効果	スピン軌道相互作用
遷移金属	~ eV	~ eV	10 meV~100 meV
稀土類	〃	meV ~ 10 meV	~ 100 meV
アクチナイド	〃	10 meV~ 100 meV	~ 100 meV

表 1: 磁性原子における相互作用の強さ

記録: 木山 隆 (現所属: 千葉大学理学部)

この講義で対象としている遷移金属およびその化合物の磁性体の特徴は結晶場効果が大きく、軌道角運動量は消失していることが多い。また、スピン軌道相互作用は一般に小さな値をもつ。これらのことから遷移金属化合物の場合には磁性原子のスピン自由度だけが磁性の主な原因となる場合が多い。この点からは遷移金属化合物の磁性体は比較的取り扱いやすい対象と言える。

遷移金属の Fe、Co、Ni が強磁性体であることは良く知られている。また、Cr、Mn (α -Mn) は反強磁性体である。さらに Pd、Rh、Pt などは常磁性体であるが、もう少しで強磁性になる強磁性に近い金属である。これらの物質では s バンドと混成した d バンド上にフェルミ準位があり、磁性を発現する d 電子が電気伝導も担っていると考えられる。金属磁性体の理論には、近藤効果や重い電子系の問題のように磁性を担うが伝導現象には寄与しない局在電子と電気伝導を担う伝導電子を別に考える 2 バンドモデルと、上に示した遷移金属元素やその化合物の場合のように磁性を担う電子が伝導電子と同じであると考ええる 1 バンドモデルがある。1 バンドモデルで記述されるような磁性体を一般に遍歴電子磁性体と呼ぶ。これからこの講義ノートで述べる内容については、その背景に 1 バンドモデルが仮定されている。

Fe、Co などの遍歴電子の強磁性体では磁性を担う電子のバンドの中にフェルミ準位がくるために、低温（基底状態）での自発磁化の値はボーア磁子の整数倍とならない。このことは、遍歴電子磁性体が局在モーメント系としては説明できない大きな理由のひとつである。一方で高温での常磁性磁化率の逆数は温度に比例して増大し、局在モーメントのハイゼンベルグモデルで導かれるようなキュリー・ワイス則 $\chi \propto (T - T_C)^{-1}$ を示す。Fe、Co などの磁性を説明するモデルとしては歴史的に、局在電子の存在に基づいたハイゼンベルグモデルと磁性を担う電子が遍歴電子であることを強く意識したバンドモデルに基づくものが存在した。これら局在モデルと遍歴モデルは互いに対立する理論のように思われ、どちらが正しく金属磁性体を記述するかということで激しい論争が行われた。その原因は両者それぞれに都合の良い実験事実があり、どちらか一方だけではすべてを完全に説明することができなかったことによる。1960 年代になると実験的にフェルミ面が観測され、遷移金属の磁性電子は遍歴電子であることが明らかになり、遍歴モデルはそれまでの取り扱いをより一層改良する方向で発展してきた。

図 1 は Rhodes-Wohlfarth プロットと呼ばれる図 ([1] から引用) で、さまざまな強磁性体について横軸に強磁性転移温度 T_C 、縦軸に低温での自発磁化の大きさ p_s と常磁性磁化率から求めたハイゼンベルグモデルの $2S$ の値に対応する $p_c = \sqrt{1 + p_{eff}^2} - 1$ の比をプロットしたものである。絶縁体や 2 バンドモデルで記述されるような局在モーメント系の磁性体の場合にはハイゼンベルグモデルで良く記述され、この図に示した CrB_3 や Gd のように T_C によらず $p_c/p_s = 1$ の直線上にのっていることが分かる。それに対して遍歴電子強磁性体では一般に p_c/p_s は 1 からずっと大きな値にまで広がり、図の曲線で囲まれるような領域に分布するということが経験的に知られている。その領域の中で、 T_C が比較的高く p_c/p_s が 1 に近い遍歴電子磁性体は局在モーメントに近い系と考えられている。逆に T_C が低く p_c/p_s が大きい領域にいわゆる弱い強磁性体と呼ばれている遍歴電子磁性体が分布している。同様にネール温度 T_N が低く反強磁性モーメントの小さい遍歴電子反強磁性体は弱い反強磁性体と呼ばれる。

以下の節からは、次のような順で遍歴電子磁性研究の発展について説明していく。

- バンド理論およびそれを有限温度に拡張した Stoner-Wohlfarth 理論

基底状態の性質については一応満足するような説明が得られるが、有限温度については磁化率のキュリー・ワイス則の温度依存性が説明出来ないことなどからこのような見方は破綻していると考えられている。

- パラマグノンの研究

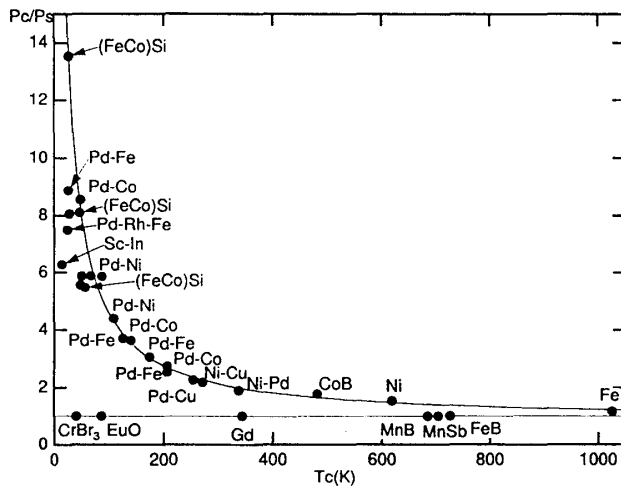


図 1: Rhodes-Wohlfarth プロット

低温での比熱の温度依存性や中性子非弾性散乱の実験結果などを説明するために基底状態からの磁気的な素励起の寄与を考慮に入れたものである。

- SCR 理論 (Moriya, Kawabata 1970 ~ [1, 2])

自由エネルギーに熱ゆらぎの効果を取り入れることにより磁化率のキュリー・ワイス則を説明することに成功する。

- Unified Theory (Moriya, Takahashi 1978 [3])

有限の大きさのスピンのゆらぎの寄与を考慮できるように SCR 理論を拡張しようとした。

- スピンの量子ゆらぎの効果 (Takahashi 1986 [4])

実験: $\text{Y}(\text{Co-Al})_2$ 、 $\text{Fe}(\text{Si-Co})$ 、 YNi 系

多くの自然現象は、その現象を特徴づけるエネルギースケールの違いにより階層的な構造をもち、例えば原子、原子核、素粒子は良く知られているようにそれぞれ特有のエネルギースケールの相互作用によっていろいろな性質や反応が支配されている。固体の性質に限ってもそれぞれの現象に特徴的なエネルギースケールが存在し、根本的には一つの方程式で記述されるはずのものであっても現象の現れ方がエネルギースケールによって全く違って見える、ということはよくあることである。固体の場合、その現象を記述するハミルトニアンの中で電子間のクーロンエネルギーや電子の飛び移りの項などは数 eV (数万 K) 程度の値をもつが、例えば並進対称性や回転対称性のような連続的自由度の対称性の破れに起因するような素励起 (格子振動、スピン波、…) の場合にはその励起エネルギーは非常に小さな値を取りうる。こうした素励起を特徴づけるエネルギースケールが我々の興味のある温度領域に含まれれば、その寄与が顕著な温度依存性を示すことになる。磁性体の場合、その磁気的なエネルギーのスケールは $10 \sim 10^3$ K と比較的小さな値となっている。従ってある現象を記述するときには、それがどのようなエネルギースケールで記述される現象なのかをはっきりと認識し、その背後にある相互作用やメカニズムに適したモデルを用いることが極めて重要である。この講義ノートの中心的な話題であるスピンゆらぎによる遍歴電子磁性の議論の部分についても系のハミルトニアンを直接取り扱うかわりに、興味の対象になっている磁性に関するエネルギースケールで本質的に重要な素励起だけを取り出して扱っているということに注意してもらいたい。

単位系について

以下の議論では、次のような単位を用いることにする。磁化 M の代わりに $g\mu_B$ の単位で表した値 m を用い、磁場 H の代わりにエネルギーの単位をもつ $h = g\mu_B H$ を用いる。 g はいわゆる g 因子を表し、 μ_B はボーア磁子である。つまり、

$$m = M/(g\mu_B), \quad H = h/(g\mu_B) \quad (1.1)$$

となる。これに対応して磁化率についても、エネルギーの逆数の次元をもち通常の磁化率の定義 M/H と次の関係にある χ を用いることにする。

$$\frac{\partial M}{\partial H} = (g\mu_B)^2 \frac{\partial m}{\partial h} = 4\mu_B^2 \chi \quad (1.2)$$

また 3 節では、結晶中に N_0 個の磁性原子（またはイオン）が含まれているとして、磁化について磁性原子 1 個当たりの磁化を μ_B 単位で表した値 σ を用いる。つまり、

$$\sigma = M/(N_0\mu_B) \quad (1.3)$$

である。

2 遍歴電子磁性研究の発展

2.1 バンド理論

フェルミ液体論によれば、十分低温で集団励起の存在が無視できるような場合には電子の 1 電子個別励起スペクトルにより系の振る舞いを記述することができる。バンド理論では電子間相互作用を次のような形で取り入れたハミルトニアン

$$H = \sum_{i\sigma} \left[\frac{\mathbf{p}_i^2}{2m} + V_C(\mathbf{r}_i) + V_{XC}^\sigma(\mathbf{r}_i) \right] \quad (2.1)$$

を解くことにより、1 電子状態のエネルギー固有値 $\varepsilon_{k\mu}$ と波動関数を求めることができる。ここで $V_C(\mathbf{r}_i)$ はクーロン相互作用を、 $V_{XC}^\sigma(\mathbf{r}_i)$ は電子間の相互作用に起因する交換相関ポテンシャルを表し、また σ は $+1$ 、 -1 の値をとりそれぞれ電子の \uparrow, \downarrow スピンを表す。バンド計算の結果をもとにフェルミ面の形や状態密度 $\rho(\varepsilon) = \sum_{k\mu} \delta(\varepsilon - \varepsilon_{k\mu})$ が求まり、さまざまな物理量を計算することができる。このようなバンド理論は電子比熱 ($C = \gamma T$)、パウリ常磁性磁化率 ($\chi = \chi_0 - a(k_B T / \varepsilon_F)^2$) など金属の示すいろいろな性質を理解する上で極めて大きな成功を収めた。そこでバンド理論の考え方をを用いて金属磁性の性質も理解しようと考えことは極めて自然な成り行きである。つまり伝導電子のエネルギーバンドが

$$\varepsilon_{k\mu}^\sigma = \varepsilon_{k\mu} - \sigma \Delta \quad (2.2)$$

のようにスピンの方向によってあるエネルギー Δ だけ分極すると考えて金属の磁性が理解できると考えるものである。バンド計算をもとにしてこのように計算された基底状態の自発磁化の値が実験で得られた値と良い一致を示す場合も多く知られている。

2.2 有限温度への拡張 – Stoner-Wohlfarth 理論

バンド理論から計算されるような 1 電子個別励起を基に、その占有数の温度変化（フェルミ分布関数の温度変化）を用いて基底状態のみならず磁性体の有限温度の性質を記述しようとするのが Stoner-Wohlfarth 理論の考え方である。

1 電子の個別励起をフェルミ分布関数 $f(\varepsilon)$ を用いて取り入れると、化学ポテンシャル μ と自発磁化の温度、磁場変化は以下の方程式を解くことにより得られる [6, 7]。

$$N = N_\uparrow + N_\downarrow = \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \rho(\varepsilon) [f(\varepsilon - \Delta - \mu) + f(\varepsilon + \Delta - \mu)] \quad (2.3)$$

$$m = \frac{N_\uparrow - N_\downarrow}{2} = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \rho(\varepsilon) [f(\varepsilon - \Delta - \mu) - f(\varepsilon + \Delta - \mu)] \quad (2.4)$$

$$\Delta = Im + g\mu_B H/2 \quad (2.5)$$

ここで N_\uparrow, N_\downarrow はそれぞれ \uparrow, \downarrow 電子の数を表し、 N は全電子数、 m は \uparrow, \downarrow 電子数の差の半分（即ち $g\mu_B m = M$ は全磁化）、 g 、 μ_B 、 H はそれぞれ電子スピンの g 因子、Bohr 磁子、外部磁場を表す。ここでは電子間の相互作用が平均場近似で取り入れられ、各磁性イオンサイトにおいて反平行スピンの 2 電子間に $U = +IN_0$ (N_0 : 磁性イオンサイトの数) の大きさのクーロン相互

作用が働くと考えている。ここで自発磁化の値が小さいとして磁化 m について展開することにより、次の式 (2.6)~(2.8) が得られる。

$$h = 2 \left[\frac{1}{\rho} - I + \frac{\pi^2 k_B^2 T^2}{6\rho} \{(\rho'/\rho)^2 - \rho''/\rho\} \right] m + Gm^3 \quad (2.6)$$

$$\left(H = \frac{1}{2\mu_B^2} \left[\frac{1}{\rho} - I + \frac{\pi^2 k_B^2 T^2}{6\rho} \{(\rho'/\rho)^2 - \rho''/\rho\} \right] M + \frac{G}{16\mu_B^4} M^3 \right) \quad (2.7)$$

$$\frac{1}{\chi} = 2 \left[\frac{1}{\rho} - I + \frac{\pi^2 k_B^2 T^2}{6\rho} \{(\rho'/\rho)^2 - \rho''/\rho\} \right] \quad (2.8)$$

熱力学的関係式により自由エネルギー $F(M)$ を磁化 M で微分すると磁場 H が得られ、さらに磁化で微分をすれば磁化率の逆数が得られる (以下の式 (2.9), (2.10) を参照) ので、これを利用すると自由エネルギーが式 (2.11) のように与えられることが分かる。

$$\frac{\partial F(M)}{\partial M} = H, \quad \frac{\partial F(m)}{\partial m} = \frac{\partial F(M)}{\partial M} \frac{\partial M}{\partial m} = g\mu_B H = h \quad (2.9)$$

$$\frac{\partial^2 F(M)}{\partial M^2} = \frac{\partial H}{\partial M} = \frac{1}{(g\mu_B)^2 \chi}, \quad \frac{\partial^2 F(m)}{\partial m^2} = \frac{\partial h}{\partial m} = \frac{1}{\chi} \quad (2.10)$$

$$\begin{aligned} F_{HF}(m) - F_{HF}(0) &= \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \cdot \varepsilon \rho(\varepsilon) [(f(\varepsilon - \Delta - \mu) + f(\varepsilon + \Delta - \mu)) - 2f(\varepsilon - \mu)] - Im^2 \\ &= \left(\frac{1}{\rho} - I + \frac{\pi^2 k_B^2 T^2}{6\rho} [(\rho'/\rho)^2 - \rho''/\rho] \right) m^2 + \frac{G}{4} m^4 + \dots \end{aligned} \quad (2.11)$$

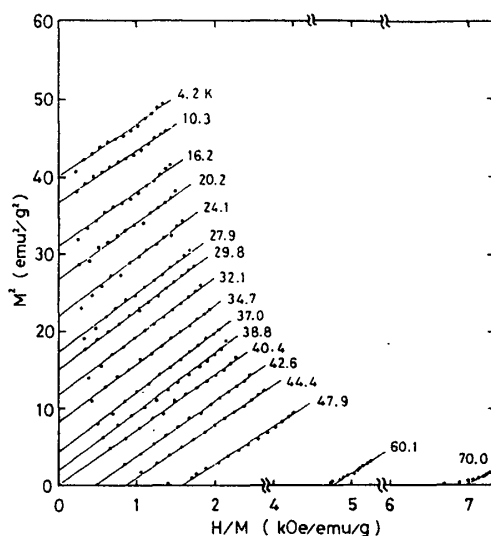
式 (2.6)~(2.8) から次のような結論が導かれる。

1. $1/\rho - I < 0$ 、つまり $I\rho > 1$ が成り立つときに強磁性が発生する。(Stoner 条件)
2. 磁化過程は $M^2 = a + bH/M$ が成り立つ。(Arrott プロットの直線性)
3. 基底状態の自発磁化 m_s は次のように表される。

$$m_s^2 = (M_s/g\mu_B)^2 = 2(I - 1/\rho)/G$$

4. キュリー温度と飽和磁化の値について、 $T_c^2 \propto (I - 1/\rho) \propto M_s^2$ の関係が成り立つ。
5. $T > T_c$ の常磁性状態での磁化率の温度依存性は $\chi^{-1} \propto (T^2 - T_c^2)$ となる。

これらのそれぞれを実際に得られている実験結果と比較してみよう。2. については図 2 に Ni_3Al の実験結果を示すが [5]、この他にも多くの遍歴電子磁性体で M^2 を H/M についてプロットすると良い直線関係が得られることが知られている。このような M^2 - H/M のプロットは Arrott プロットと呼ばれている。4. については、例えば T_c^2 と M_s^2 の圧力依存性を調べることからこの関係を確認することができる。その結果については、実験精度の問題もありあまりはっきりしたことは言えないものの、常にこの関係が成り立っているようには見えない。特に大きな問題となるのは 5. である。遍歴電子磁性体の磁化率は絶縁体、局在モーメント系と同様にキュリー・ワイス則に従うような温度変化をするということが知られているが、ここで得られている温度依存性はそれとは異なるものである。また磁化率の温度変化の大きさも実際の系ではここで予想されるよりもずっと大きい。キュリー・ワイス則は良く知られているように局在モーメントモデルから簡単に導くことができる。しかし、局在モーメント (ハイゼンベルグ) モデルによると有効ボーア磁子数 p_{eff} と基底状態での自発磁化 p_s の比は $p_{eff}/p_s = \sqrt{S(S+1)}/S \sim 1$ となるはずであるので、実際の遍

図 2: Ni_3Al の Arrott プロット

歴電子磁性体で観測されている非常に大きな比の値 p_{eff}/p_s が存在すること（表 2 参照）は、ハイゼンベルグモデルで説明することは困難である。

このようにバンド理論では基底状態の性質については一部うまく説明できるように見える場合もあるが、有限温度の性質についてはその拡張である Stoner-Wohlfarth 理論には多くの困難がある。また、有限温度での磁化率のキュリー・ワイス則の存在は局在モーメントモデルが適用できるようにも思わせるが、定量的には p_{eff}/p_s の大きさなど全く説明することができない。

	$T_C[K]$	$p_s[\mu_B]$	$p_{\text{eff}}[\mu_B]$	p_{eff}/p_s
Sc_3In	~6	0.04	0.70	17
Ni_3Al	41.5	0.075	1.3	17.3
ZrZn_2	~25	0.12	1.3	11
MnSi	30	0.4	2.2	5.3
$\text{Y}(\text{Co}_{0.87}\text{Al}_{0.13})_2$	7	0.042	2.5	59.5
$\text{Y}(\text{Co}_{0.85}\text{Al}_{0.15})_2$	40	0.138	2.15	15.6
$\text{Y}(\text{Co}_{0.83}\text{Al}_{0.17})_2$	0.7	0.095	2.13	22.4
Au_4V	~55	0.83	1.7	2.1
Ni	627	0.6	1.6	2.7
Co	1388	1.7	3.1	1.8
Fe	1043	2.2	3.0	1.4
EuO	69	7.0	7.9	1.1

表 2: さまざまな磁性体の磁気パラメータ

2.3 パラマグノンの研究

絶縁体の磁性体の磁気秩序状態においては、スピン波の集団励起によってその低エネルギー励起がうまく記述される。遍歴電子磁性体においても T_C 以下であったり、外部磁場が存在してスピンの分極している状態ではスピン波つまり集団励起が存在する。同様に常磁性状態であっても電子間相互作用 I が十分大きく強磁性発生寸前の場合においては低エネルギーの集団励起のモードが、スピン波の場合と同じようにかなり良い固有モードとして存在し、それによって低温での電子比熱係数が増大するということが明らかにされた。この励起は、スピン波を量子化したものをマグノンと呼ぶのにならって常磁性状態におけるマグノンに対応するモードとしてパラマグノンと呼ばれる。従って、遍歴電子磁性体においても Stoner-Wohlfarth 理論で考慮された 1 電子の個別励起以外の磁氣的集団励起の効果を取り入れ、これを自由エネルギーに反映させる事が重要であると認識された。後に述べる SCR 理論ではこの集団励起、言い換えると平均場近似を用いることによって無視されていた磁化の値の熱平衡値からのずれに対応するスピンのゆらぎ ($\langle \delta \mathbf{S}^2 \rangle = \langle \mathbf{S}^2 \rangle - \langle \mathbf{S} \rangle^2$) の効果を考慮に入れる必要が認識されるに至った。後の節でも必要となるので、ここで少し遍歴電子磁性体における動的磁化率のスペクトルの性質および動的磁化率とスピンのゆらぎとの関係について説明することにする。

遍歴電子磁性体におけるスピンのゆらぎのスペクトル

2.3.1 動的磁化率と低エネルギーの磁気励起

磁性体の磁氣的な励起の様子を知るための重要な量として動的磁化率がある。磁性体の重要な物理量に磁化率があるが、これは磁性体に外部から一様静磁場をかけたときに系の示す応答として定義される。動的磁化率は時間および場所によって変化するような磁場 $H(\mathbf{r}, t)$ をかけたときの系の応答、つまり誘起された磁化 $M(\mathbf{r}, t)$ と $H(\mathbf{r}, t)$ を関係づける量として定義される。これを時間についてフーリエ変換してやると、系に存在する励起状態が磁氣的性質に対してどのような影響を与えるかについて詳しい情報を得ることができる。外部磁場 $H(\mathbf{r}, t)$ を次のようにフーリエ変換し、

$$H(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{(2\pi)^4} \int d\mathbf{q} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \mathcal{H}(\mathbf{q}, \omega) e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega \cdot t)} \quad (2.12)$$

そのフーリエ成分 $\mathcal{H}(\mathbf{q}, \omega) e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega \cdot t)}$ に対する磁化の応答

$$M_{\mathbf{q}, \omega}(\mathbf{r}, t) = \chi(\mathbf{q}, \omega) \mathcal{H}(\mathbf{q}, \omega) e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega \cdot t)} \quad (2.13)$$

を求めてみよう。 $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ が分かれば、線形応答の範囲では重ね合わせが成り立つので次の形に磁場 $H(\mathbf{r}, t)$ に対する磁化 $M(\mathbf{r}, t)$ の応答が表される。

$$M(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{(2\pi)^4} \int d\mathbf{q} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \chi(\mathbf{q}, \omega) \mathcal{H}(\mathbf{q}, \omega) e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega \cdot t)} \quad (2.14)$$

この係数 $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ を動的磁化率と呼ぶ。以下では、遍歴電子磁性体の磁気励起スペクトルを知るために動的磁化率について少し調べてみることにする。

相互作用のない自由電子ガスモデルの場合の動的磁化率 $\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$ は容易に計算することができる [7, 8, 9]。一般に動的磁化率は複素数の値となり、 $\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$ の実部と虚部は次のように求められる。

$$\chi_0(\mathbf{q}, \omega) = \text{Re}\chi_0(\mathbf{q}, \omega) + i\text{Im}\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$$

$$\begin{aligned}
&= \lim_{\delta \rightarrow 0} \frac{1}{2} \sum_k \frac{f(\varepsilon_{k+q}) - f(\varepsilon_k)}{\varepsilon_k - \varepsilon_{k+q} + \hbar(\omega + i\delta)} \\
&= \text{P.V.} \frac{1}{2} \sum_k \frac{f(\varepsilon_{k+q}) - f(\varepsilon_k)}{\varepsilon_k - \varepsilon_{k+q} + \hbar\omega} + \frac{i\pi}{2} \sum_k (f(\varepsilon_k) - f(\varepsilon_{k+q})) \delta[\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k - \hbar\omega] \quad (2.15)
\end{aligned}$$

ここで $P.V.$ は主値を表す。また、この式の $\mathbf{q} \sim 0$ 、 $\omega \sim 0$ の近傍における展開から、次のような \mathbf{q} 、 ω -依存性が得られる。

$$\frac{\chi_0(\mathbf{q}, \omega)}{\chi_0(0, 0)} = 1 - Aq^2 + iC\frac{\omega}{q} + \dots \quad (2.16)$$

したがって $\text{Im}\chi_0(\mathbf{q}, \omega) \propto \omega/q$ が成り立つ [10]。遍歴電子反強磁性体のときに反強磁性波数 \mathbf{Q} のまわりで展開した場合には $\text{Im}\chi_0(\mathbf{Q} + \mathbf{q}, \omega) \propto \omega$ が成り立つことに注意しておく。このときの係数 A 、 C はバンド構造によって決まると考えられる。

式 (2.15) から分かるように、常磁性状態の場合の動的磁化率は一般的な性質として、実部、虚部が周波数 ω に関して次のような対称性 (偶奇性) をもち、またそれらの間に Kramers-Kronig の関係式が成り立つ。

$$\text{Re}\chi(\mathbf{q}, -\omega) = \text{Re}\chi(\mathbf{q}, \omega), \quad \text{Im}\chi(\mathbf{q}, -\omega) = -\text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (2.17)$$

$$\text{Re}\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega')}{\omega' - \omega}, \quad \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\text{Re}\chi(\mathbf{q}, \omega')}{\omega' - \omega} \quad (2.18)$$

自由電子ガスモデルに電子間相互作用を入れた場合、平均場近似を動的な場合に拡張した RPA (Random Phase Approximation) を用いて動的磁化率を計算することができる [7, 8]。2.2 節と同様に相互作用を I としたとき、その結果は

$$\chi_{RPA}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi_0(\mathbf{q}, \omega)}{1 - 2I\chi_0(\mathbf{q}, \omega)} \quad (2.19)$$

となる。動的磁化率の \mathbf{q} 、 ω 依存性は次のように表すことができる。

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\chi_{RPA}(\mathbf{q}, \omega)} &= \frac{1}{\chi_0(\mathbf{q}, \omega)} - 2I \\
&= \frac{1}{\chi_0(0, 0)} \left(1 + Aq^2 - \frac{iC\omega}{q} + \dots \right) - 2I \\
&= \frac{1}{\chi_{RPA}(0, 0)} + \frac{1}{\chi_0(0, 0)} \left(Aq^2 - \frac{iC\omega}{q} + \dots \right) \\
&\cong \frac{1 + \frac{i\omega}{\Gamma_q}}{\chi_{RPA}(\mathbf{q}, 0)} \\
\Gamma_q &= \frac{A}{C} q \left[q^2 + \frac{\chi_0(0, 0)}{A\chi_{RPA}(0, 0)} \right] = \Gamma_0 q (q^2 + \kappa^2) \\
\Gamma_0 &= \frac{A}{C}, \quad \kappa = \sqrt{\frac{\chi_0(0, 0)}{A\chi_{RPA}(0, 0)}} \quad (2.20)
\end{aligned}$$

虚数部だけを取り出してみると

$$\text{Im}\chi_{RPA}(\mathbf{q}, \omega) = \text{Re}\chi_{RPA}(\mathbf{q}, 0) \frac{\Gamma_q \omega}{\omega^2 + \Gamma_q^2} \quad (2.21)$$

となり $\text{Im}\chi_{RPA}(\mathbf{q}, \omega)/\omega$ は Lorentz 関数型のスペクトルをもつことが分かる。磁化率が $\chi(\mathbf{q}, 0) \propto 1/(q^2 + \xi^{-2})$ のような q 依存性をもつとき、 $\chi(\mathbf{q}, 0)$ をフーリエ変換してみると $\chi(\mathbf{r}, 0) \propto \exp(-r/\xi)/r$ となることから ξ は磁気的な相関長を意味することが分かる。 $\chi_{RPA}(\mathbf{q}, 0)$ は式 (2.20) を書き換えて

$$\chi_{RPA}(\mathbf{q}, 0) = \frac{\chi_0(\mathbf{0}, 0)}{A} \frac{1}{q^2 + \frac{\chi_0(\mathbf{0}, 0)}{A\chi_{RPA}(\mathbf{0}, 0)}} \quad (2.22)$$

のように表せるので、 $\kappa = \sqrt{\chi_0(\mathbf{0}, 0)/A\chi_{RPA}(\mathbf{0}, 0)} = \xi^{-1}$ は磁気相関長の逆数となることが分かる。

ここで、後の節で必要になるので Γ_0 および A の代わりに温度の次元をもつパラメーター T_0 および T_A をそれぞれ次のように導入する。

$$T_0 = \frac{\hbar\Gamma_0 q_B^3}{2\pi k_B}, \quad T_A = \frac{N_0 A q_B^2}{2k_B \chi_0(\mathbf{0}, 0)} = \frac{N_0 q_B^2}{2k_B \chi_{RPA}(\mathbf{0}, 0) \kappa^2} \quad (2.23)$$

これまでの動的磁化率について説明したことをまとめると、

$$\chi_{RPA}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi_{RPA}(\mathbf{q}, 0)}{1 + \frac{i\omega}{\Gamma_q}} \quad (2.24)$$

$$\chi_{RPA}(\mathbf{q}, 0) = \frac{\chi_0(\mathbf{0}, 0)}{A} \frac{1}{(q^2 + \kappa^2)} = \frac{N_0 q_B^2}{k_B T_A} \frac{1}{(q^2 + \kappa^2)} \quad (2.25)$$

$$\text{Im}\chi_{RPA}(\mathbf{q}, \omega) = \chi_{RPA}(\mathbf{q}, 0) \frac{\Gamma_q \omega}{\omega^2 + \Gamma_q^2} \quad (2.26)$$

$$\Gamma_q = \Gamma_0 q (q^2 + \kappa^2) = \frac{2\pi k_B T_0}{\hbar} (q/q_B) \left((q/q_B)^2 + (\kappa/q_B)^2 \right) \quad (2.27)$$

$$\kappa^2 = \frac{\chi_0(\mathbf{0}, 0)}{A\chi_{RPA}(\mathbf{0}, 0)} = \frac{N_0 q_B^2}{2k_B T_A \chi_{RPA}(\mathbf{0}, 0)} \quad (2.28)$$

となる。

ここで得られた動的磁化率の様子について、図 3 に $\text{Re}\chi_{RPA}(\mathbf{q}, 0)$ の q 依存性を、また図 4 には $\text{Im}\chi_{RPA}(\mathbf{q}, \omega)$ の ω 依存性の概略を示す。図に示したように T_0 、 T_A はそれぞれ周波数および波数空間におけるスピンのゆらぎのスペクトルの分布幅を表す。ハイゼンベルグモデルでは T_0 お

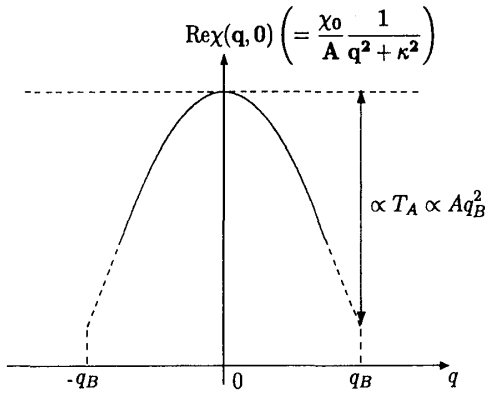


図 3: $\text{Re}\chi_{RPA}(\mathbf{q}, 0)$ の q 依存性

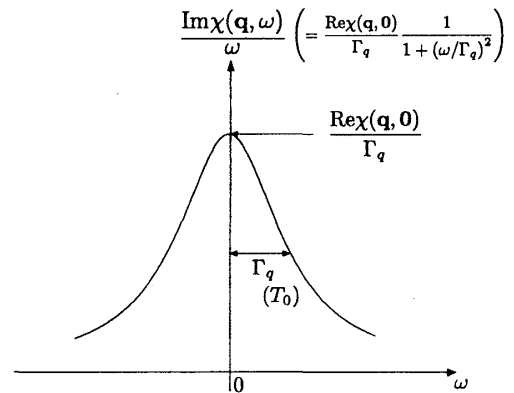


図 4: $\text{Im}\chi_{RPA}(\mathbf{q}, \omega)/\omega$ の ω 依存性

よび T_A は両方とも交換相互作用の大きさ J/k_B 程度の値をもつと考えられるが、遍歴電子磁性体

の場合はこれらは必ずしも同程度の値になる必要はない。弱い強磁性体などの遍歴電子磁性体では T_A は $10^3 \sim 10^4 K$ 程度の大きな値をもち (3.2.2 節 表 6 参照)、ゆらぎは局在モーメント系に比べて大きな波数依存性 (長い相関長) をもっている。したがって、弱い強磁性体はスピンのゆらぎは $q \sim 0$ の長波長の領域にとりわけ大きな振幅をもち、実空間ではなく波数空間で局在しているといえることができる。

動的磁化率の虚部は、自由電子ガスモデルの場合に得られている式 (2.15) の第 2 項で表されるように磁氣的励起のスペクトル分布を表すと考えられる。このスペクトルは、磁性を示さない通常の金属の場合には図 5 のように ω に関してバンド幅程度の広いエネルギー領域に渡って分布している。ところが、磁性の原因となるクーロン相互作用などの影響により I が増大し磁性が発生する条件に系が近づくにつれ、図 5 に示されるように低エネルギー領域におけるその値が強く増強されるような振る舞いを示すようになる。このピーク幅が狭くなればスピン励起の一つの固有モードのようなものと考えることができ、パラマグノンと呼ばれている。

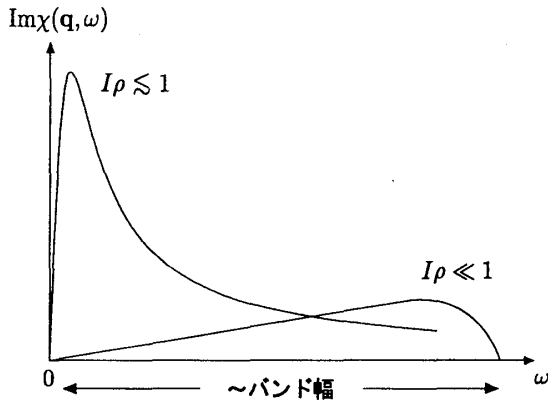


図 5: $\text{Im}\chi_{RPA}(\mathbf{q}, \omega)$ の ω 依存性

2.3.2 スピンのゆらぎ

上で述べた動的磁化率はスピンのゆらぎと密接に関連している。各磁性原子のスピンは基底状態においても量子力学的に、有限温度においてはさらに熱的に平衡状態の値のまわりにゆらぎをもっている。各磁性イオンのスピンは平均値とゆらぎの和として次のように表すことができる。

$$\mathbf{S}_i = \langle \mathbf{S}_i \rangle \left(= \frac{-M}{N_0 g \mu_B} \right) + \delta \mathbf{S}_i \quad (2.29)$$

スピンのゆらぎの振幅の 2 乗 $\langle \delta \mathbf{S}_i^2 \rangle$ は

$$\langle \delta \mathbf{S}_i^2 \rangle = \langle \mathbf{S}_i^2 \rangle - \langle \mathbf{S}_i \rangle^2 \quad (2.30)$$

と表せ、常磁性のときには $\langle \delta \mathbf{S}_i^2 \rangle = \langle \mathbf{S}_i^2 \rangle$ となる。 $\langle \mathbf{S}_i^2 \rangle$ は同じ位置における同時刻の自己相関関数と考えることができるので、 \mathbf{S}_i^2 の熱力学的な期待値は統計力学の揺動散逸定理により動的磁化率の虚数部分を用いて次のように表わすことができる [6]。

$$\langle \mathbf{S}_i^2 \rangle = \frac{3\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \coth(\beta \hbar \omega / 2) \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (2.31)$$

ここで右辺に現れる ω に関する因子 $\coth(\beta\hbar\omega/2)$ は以下のようにボーズ因子 $n(\omega) (= (e^{\beta\hbar\omega} - 1)^{-1})$ と定数の和の形に表すことができる。

$$\begin{aligned}\coth(\beta\hbar\omega/2) &= \frac{e^{\beta\hbar\omega} + 1}{e^{\beta\hbar\omega} - 1} = 1 + \frac{2}{e^{\beta\hbar\omega} - 1} \\ &= 1 + 2n(\omega).\end{aligned}\quad (2.32)$$

この関係式を利用して、上の式 (2.31) を被積分関数がボーズ因子に比例する項と残りの項の和として次のように分けて表すことができる。

$$\langle \mathbf{S}_i^2 \rangle = \langle \mathbf{S}^2 \rangle_T + \langle \mathbf{S}^2 \rangle_Z \quad (2.33)$$

$$\langle \mathbf{S}_i^2 \rangle_T = \frac{6\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \frac{1}{e^{\beta\hbar\omega} - 1} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (2.34)$$

$$\langle \mathbf{S}_i^2 \rangle_Z = \frac{3\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (2.35)$$

調和振動子の場合との類推から被積分関数にボーズ因子を含む項 $\langle \mathbf{S}^2 \rangle_T$ を熱ゆらぎと呼ぶことにする。もう一方のボーズ因子を含まない項 $\langle \mathbf{S}^2 \rangle_Z$ は、零点ゆらぎ、またはこの項が量子力学的な効果によって生ずることを考慮し量子ゆらぎと呼ぶことにする。熱ゆらぎの項は

$$\langle \mathbf{S}_i^2 \rangle_T \sim \begin{cases} \frac{6\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \frac{k_B T}{\hbar\omega} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) & \frac{\hbar\omega}{k_B T} \ll 1 \text{ のとき} \\ 0 & \frac{\hbar\omega}{k_B T} \gg 1 \text{ のとき} \end{cases} \quad (2.36)$$

となるので、熱ゆらぎは低エネルギー領域に大きな成分をもっていることが分かる。それに対して、量子ゆらぎのスペクトルは高エネルギー領域にまで広く分布している。また基底状態 ($T = 0$) では熱ゆらぎの振幅は 0 となる。

2.3.3 スピンのゆらぎのスペクトルの観測

動的磁化率、あるいはスピンのゆらぎの効果はいろいろな物理量に間接的に反映されるが、以下のような実験方法で直接的に見ることができる。

中性子の磁気非弾性散乱

動的磁化率、あるいはスピンのゆらぎのスペクトルが波数および振動数空間、つまり (\mathbf{q}, ω) の関数としてどのように分布しているかは中性子の磁気非弾性散乱により直接観測することができる。また、その結果から動的磁化率のパラメータ T_0 (or Γ_0)、 T_A (or A) を求めることができる。

中性子散乱の散乱断面積は動的磁化率の虚部と次のような関係にある。

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \right) \propto \frac{1}{1 - e^{-\beta\hbar\omega}} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad \left(\simeq \frac{k_B T}{\hbar\omega} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (\beta\hbar\omega \sim 0) \right) \quad (2.37)$$

典型的な弱い強磁性体であると考えられている MnSi について行われた中性子散乱の測定結果を図 6 に示す。図 6 は横軸に \mathbf{q} 、縦軸に $\hbar\omega$ をとって散乱強度 ($\propto (1 - e^{-\beta\hbar\omega})^{-1} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \propto \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega)/\omega$) の等高線を示している。この図より散乱強度が $\mathbf{q} \sim 0$ 、 $\omega \sim 0$ の領域に非常に大きな値をもっていることが分かる。この実験結果は、式 (2.24)~(2.28) に示したような動的磁化率、つまりスピ

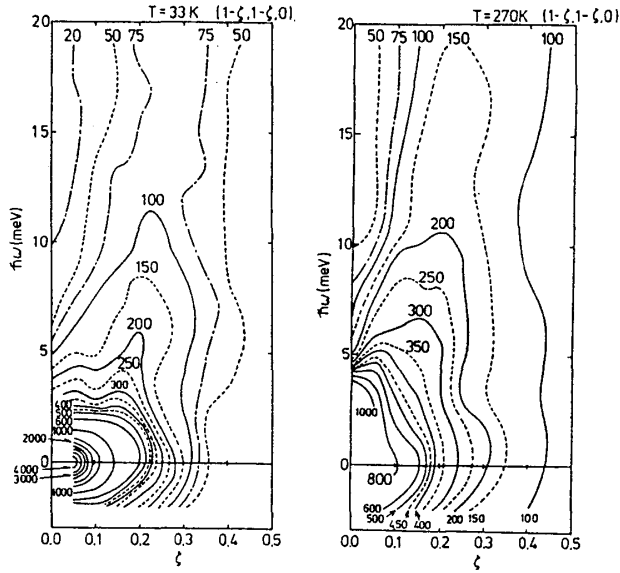
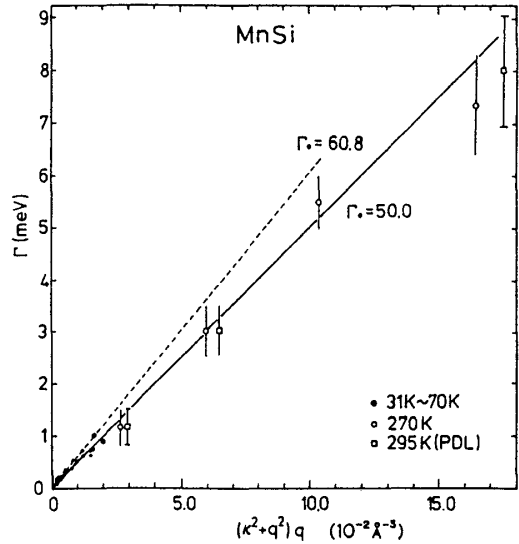


図 6: MnSi の常磁性磁気散乱強度

図 7: MnSi の Γ_q の q 依存性

ンのゆらぎのスペクトル分布を用いて適当なパラメータを仮定することにより非常に良く再現されることが確かめられている。動的磁化率の虚部が Lorentz 型のスペクトルで表されているとき $\text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega)/\omega$ の半値幅は Γ_q となるので、図 6 の ω 方向の半値幅から Γ_q が得られる。求まった Γ_q の値を図 7 のように $q(q^2 + \kappa^2)$ に対してプロットすると、式 (2.27) に表されるように直線的になることが実際確かめられ、この傾きから Γ_0 あるいは T_0 を求めることができる。また、 $\lim_{\omega \rightarrow 0} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega)/\omega = \chi(\mathbf{q}, 0)/\Gamma_q$ であるから図 6 の $\omega = 0$ 上における散乱強度の q 依存性から T_A を求めることができる。

NMR 核磁気緩和率

NMR の核磁気縦緩和率 T_1 は、動的磁化率と次のような関係にある。

$$1/T_1 T = 2\gamma_n^2 k_B \sum_{\mathbf{q}} 2|A_{\mathbf{q}}|^2 \frac{\text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega_0)}{\omega_0} \cong 2\gamma_n^2 k_B \sum_{\mathbf{q}} 2|A_{\mathbf{q}}|^2 \frac{\text{Re}\chi(\mathbf{q}, 0)}{\Gamma_q}$$

従って、超微細結合定数 $|A_{\mathbf{q}}|^2$ の値が何らかの方法で評価できれば T_1 の測定からもゆらぎのエネルギー幅 Γ_q に関する情報を得ることができ、 T_0 を決定することができる。

2.4 SCR 理論

SCR 理論 (Self-Consistent Renormalization Theory) は弱い強磁性体、弱い反強磁性体を対象として、Hartree-Fock 近似に基づく 1 電子近似理論である Stoner-Wohlfarth 理論のもつ不都合を改良する目的から考え出された。つまり 1 電子近似の Hartree-Fock 近似では考慮されなかったスピン波のような集団励起、すなわちスピンのゆらぎによる自由エネルギーへの寄与を補正として取り入れようと考え出された。Hartree-Fock 近似の自由エネルギー $F_{HF}(M, T)$ に集団励起あるいはスピンのゆらぎによる補正項 $\delta F(M, T)$ を加え、ヘルムホルツの自由エネルギー $F(M, T)$ が

次のように求まれば、

$$F(M, T) = F_{HF}(M, T) + \delta F(M, T) \quad (2.38)$$

熱力学的関係式より磁化率は

$$1/\chi = \frac{4\mu_B^2 \partial^2 F(M, T)}{\partial M^2} \quad (2.39)$$

により計算される。

結局、問題は $\delta F(M, T)$ を如何に求めるかということになる。ここでは $\delta F(M, T)$ を求めるために次のように考えてみよう。自由エネルギーがゆらぎの振幅 \mathbf{S}_q を用いて表されると考えたとき、 $q=0$ の成分のみを含む自由エネルギーに対応する式 (2.11) を拡張して、自由エネルギー密度がスピン密度の関数として次の形で表されると仮定しよう。

$$\psi(\mathbf{r}) = \left(\frac{1}{\rho} - I\right) V |\mathbf{S}(\mathbf{r})|^2 + \frac{1}{4} G V^3 |\mathbf{S}(\mathbf{r})|^4 \quad (2.40)$$

$$\Psi = \int \psi(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (2.41)$$

ゆらぎの振幅が小さく、またゆらぎの長波長 ($q \sim 0$) 成分の振幅が特に大きいような値をもつような場合に、このような形は正当化されると考えられる。自由エネルギー F は汎関数積分を用いて

$$F(m) = -T \ln \int \prod_{\mathbf{q} \neq 0} d\mathbf{S}(\mathbf{q}) \exp \left(-\frac{\Psi[\mathbf{S}(\mathbf{q})]}{T} \right) \quad (2.42)$$

と計算でき、さらにその結果を用いて $\partial F / \partial m = h$ によって平衡状態の m 、 h 、 $\langle \mathbf{S}_i^2 \rangle$ の間の関係が次のように求められる。

$$h = \left\{ 2 \left(\frac{1}{\rho} - I \right) + G N_0^2 \left(2 \langle \mathbf{S}_{i\perp}^2 \rangle + 3 \langle \mathbf{S}_{i\parallel}^2 \rangle \right) \right\} m + G m^3 \quad (2.43)$$

常磁性のときには $\langle \mathbf{S}_{i\parallel}^2 \rangle = \langle \mathbf{S}_{i\perp}^2 \rangle = \langle \mathbf{S}_i^2 \rangle / 3$ 、 $m=0$ であるから両辺を m で微分して

$$\begin{aligned} \frac{1}{\chi} &= 2 \left(\frac{1}{\rho} - I \right) + \frac{5k_B \bar{F}_1}{3N_0} \langle \mathbf{S}_i^2 \rangle \\ \bar{F}_1 &= G N_0^3 / k_B \end{aligned} \quad (2.44)$$

となる。ここでパラメータ \bar{F}_1 は温度の次元をもつ量として導入されている。前節で説明したように上式のゆらぎの項 $\langle \mathbf{S}_i^2 \rangle$ は揺動散逸定理 (式 (2.31)) により動的磁化率を用いて表すことができる。

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{S}_i^2 \rangle &= \langle \mathbf{S}^2 \rangle_T + \langle \mathbf{S}^2 \rangle_Z \\ &= \frac{6\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \frac{1}{e^{\beta\hbar\omega} - 1} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) + \frac{3\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \end{aligned} \quad (2.45)$$

最初 SCR 理論ではエネルギーの低い励起である熱ゆらぎに対し、比較的エネルギーの高い励起である零点ゆらぎの振幅の温度依存性は無視できると考えていた。したがって、上の零点ゆらぎの項は温度によらない定数であると考え、基底状態を考える場合の相互作用定数などに対する繰り込み効果としてこの効果がすでに取り込まれていると考えれば、温度依存性を考える場合には無視して

もよいと考えられた。しかしながら、最近では零点ゆらぎの寄与も温度依存性に対して無視できないと考えられるようになってきている。

熱ゆらぎの寄与だけを考慮する場合は、 q, ω に関する原点近傍のゆらぎが特に重要となるため、弱い強磁性体に対する動的磁化率として式 (2.24)~(2.28) のような Lorentz 型のスペクトルを仮定することができる。動的磁化率に対する式 (2.24)~(2.28) を上の式に代入し q の和を積分におきかえると

$$\begin{aligned}
 \langle S_i^2 \rangle &= \langle S_i^2 \rangle_T = \frac{6\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \frac{1}{e^{\beta\hbar\omega} - 1} \frac{\chi_0(\mathbf{0}, 0)}{A} \frac{1}{q^2 + \kappa^2} \frac{\Gamma_q \omega}{\Gamma_q^2 + \omega^2} \\
 &= \frac{6\hbar}{N_0^2} \int_0^{q_B} \frac{3N_0}{4\pi q_B^3} \times 4\pi q^2 dq \int_0^\infty \frac{\chi_0 \Gamma_0 q}{A} \frac{d\omega}{\pi} \frac{1}{e^{\beta\hbar\omega} - 1} \frac{\omega}{\Gamma_q^2 + \omega^2} \\
 &= \frac{3\hbar}{2\pi^2} \frac{\chi_0 \Gamma_0 v_0}{AN_0} \int_0^{q_B} dq q^3 \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] \\
 &= \frac{9T_0}{T_A} \int_0^1 dx x^3 \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] \tag{2.46} \\
 u &= \frac{\hbar \Gamma_q}{2\pi k_B T} = \frac{\hbar \Gamma_0 q (\kappa^2 + q^2)}{2\pi k_B T} = \frac{T_0 x ((\kappa/q_B)^2 + x^2)}{T} \\
 x &= q/q_B \\
 q_B &= \left(\frac{6\pi^2}{v_0} \right)^{1/3}
 \end{aligned}$$

が得られる。ここで $\psi(u)$ はダイガンマ関数を表し (3.1.3 節 式 (3.14) 参照)、 v_0 は磁性原子当たりの体積、また、 q_B はブリルアンゾーンを球で近似したときの半径である。

SCR 理論では式 (2.44) と (2.46) を連立させて解くことから磁化率が求められる。式 (2.44) の左辺にある χ と右辺の $\langle S_i^2 \rangle$ の中の κ を通して現れる χ ($\kappa = \sqrt{q_B^2 N_0 / 2k_B T_A \chi}$) を自己無撞着になるように (Self-Consistent Renormalization) 磁化率を求めることから SCR 理論と名付けられている。基底状態では熱ゆらぎの振幅 $\langle S_i^2 \rangle_T = 0$ となり量子ゆらぎの効果はすでに相互作用定数 I の値の繰り込み効果として考慮済みと考えている。したがって、もはやゆらぎは存在しないと見なすことができ、基底状態については実質的に 2.2 節の結果と一致する。 $T = T_C$ の臨界温度の場合には $1/\chi = 0$ となり、また基底状態の自発磁化 m_s は $m_s^2 = 2(I - 1/\rho)/G$ (2.2 節参照) となることを用いて式 (2.44) をさらに書き換えると、

$$\frac{N_0}{\chi(T)} = \frac{5}{3} k_B \bar{F}_1 \left[\langle S_i^2 \rangle_T - \langle S_i^2 \rangle_{T=T_C} \right] \tag{2.47}$$

$$\langle S_i^2 \rangle_{T=T_C} = \frac{3}{5} \frac{N_0}{k_B \bar{F}_1} 2 \left(I - \frac{1}{\rho} \right) = \frac{3}{5} \left(\frac{m_s}{N_0} \right)^2 \tag{2.48}$$

が得られる。これを解くと、図 8 のような結果 ([1] から引用) が得られる。 $1/\chi$ はほぼ T に比例して温度と共に増加し、実際の系と同様にキュリーワイス的な振る舞いを示していることが分かる。また、式 (2.47) から分かるように常磁性領域で $\langle S_i^2 \rangle$ は $1/\chi$ と同じ温度変化を示すという結論が得られる。

このようにして磁化率を計算しようとするとき必要とされるのは m_s, \bar{F}_1, T_A, T_0 の 4 つのパラメーターである。この内基底状態での自発磁化 m_s の値は磁気測定により求めることができる。また、 $T = 0$ では熱ゆらぎは存在しないので、式 (2.43)、(2.44) より

$$\frac{N_0 h}{m(h)} = k_B \bar{F}_1 \left[\left(\frac{m(h)}{N_0} \right)^2 - \left(\frac{m_s}{N_0} \right)^2 \right] \tag{2.49}$$

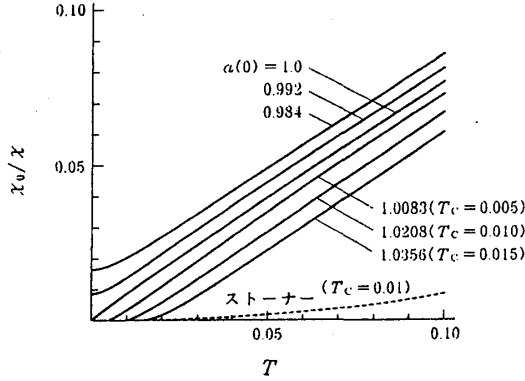


図 8: SCR 理論によって計算された磁化率の温度変化

が成り立つ。つまり基底状態で磁化の磁場依存性を測定すれば、Arrott プロットの傾きより \bar{F}_1 を求めることができる。例えば Ni_3Al は式量が 203、式量あたり磁性原子が 3 個含まれていることを考慮して、図 2 より $\bar{F}_1 = 9.4 \times 10^4 \text{K}$ と求められる。スピンのゆらぎのパラメータ T_A 、 T_0 は、2.3.3 節で述べたように中性子散乱や NMR 測定により決定することができる。臨界温度 $T = T_C$ においては $1/\chi = \kappa = 0$ が成り立つので、式 (2.46)~(2.48) より

$$\begin{aligned} & \frac{9T_0}{T_A} \int_0^1 dx x^3 \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] - \frac{3}{5} \left(\frac{m_s}{N_0} \right)^2 \\ &= \frac{3T_C^{4/3}}{T_A T_0^{1/3}} \int_0^{T_0/T_C} du u^{1/3} \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] - \frac{3}{5} \left(\frac{m_s}{N_0} \right)^2 = 0 \end{aligned} \quad (2.50)$$

$$u = \frac{T_0 x^3}{T_C} \quad (2.51)$$

が得られる。さらに、 $T_0/T_C \rightarrow \infty$ と近似すれば

$$\begin{aligned} & \frac{3T_C^{4/3}}{T_A T_0^{1/3}} C(4/3) = \frac{3}{5} \left(\frac{m_s}{N_0} \right)^2 \\ & T_C = \left(\frac{1}{5C(4/3)} \right)^{3/4} \left(\frac{m_s}{N_0} \right)^{3/2} T_A^{3/4} T_0^{1/4} \cong 0.2977 \left(\frac{m_s}{N_0} \right)^{3/2} T_A^{3/4} T_0^{1/4} \end{aligned} \quad (2.52)$$

が得られ、 T_C を T_0 、 T_A 、 m_s の値を用いて表すことができる ($C(\nu)$ については 3.1.3 節 式 (3.18) 参照)。したがって磁化測定によって T_C を決めればパラメータを決めるために測定する量を一つ減らすことができる。表 3 に中性子散乱の実験や NMR の測定から得られた T_0 、 T_A の値と磁化測定から求めた m_s を用いて式 (2.52) を用いて計算した $T_C^{\text{calc.}}$ とその実測値 $T_C^{\text{obs.}}$ の比較を示した。表から分かるようにこれら両方の値は良い一致を示していることが分かる。

SCR 理論の成果

SCR 理論は、遍歴電子磁性体の中の弱い強磁性体、反強磁性体について磁化率のキュリー・ワイス則にしたがう温度依存性を導き出すという点において大きな成果があった。また SCR 理論はこれらの遍歴電子磁性体に関する多くの物理量、例えば比熱等の熱力学量、電気抵抗等の輸送現

	$m_s (= p_s [\mu_B] / g)$	$T_0 [K]$	$T_A [K]$	$T_C^{obs.} [K]$	$T_C^{calc.} [K]$
MnSi	0.2	231	2.08×10^3	30	32
Ni ₃ Al	0.038	3590	3.09×10^4	41.5	40

表 3: 式 (2.52) による T_C の計算値と実測値の比較

象、さらに核磁気緩和率や磁気体積効果等の温度依存性などのふるまいについても定量的な計算を行なっている。それらの多くは実験と良い一致を示すことも知られている。

一方で SCR 理論においては、零点ゆらぎの振幅を一定と仮定していることから、熱ゆらぎの振幅の温度依存性を反映し、ゆらぎの振幅 $\langle S_i^2 \rangle$ は常磁性領域で温度の上昇に伴って増大することになる。ハイゼンベルグモデルで記述されるような磁性体では、スピンの 2 乗振幅の値は一定の値であることから、これらの磁性体を比較した場合に、このゆらぎの振幅が温度とともに変化することが、特に弱い強磁性体の大きな特徴であるという主張がなされた。

2.5 SCR 理論の拡張 (Unified Theory)

SCR 理論は Hartree-Fock 近似に対する補正を考えるという立場をとる関係から、Hartree-Fock 近似からのずれがそれほど大きくない、つまりゆらぎの振幅があまり大きくない場合に正当化されると考えられている。弱い強磁性体、反強磁性体はその適用範囲に入る典型的な磁性体であると思われている。このような立場から理論をさらに発展させようと考え、小さな振幅であるという制約を緩和することが当然のこととして考えられる。このように SCR 理論の制約を越えて、より広い適用範囲をもつ理論を構築する必要性から以下のような目的で汎関数積分法に基づいた新たな理論の枠組み (Unified Theory) が提唱された。

- 大きな振幅のゆらぎの取り扱いを可能にする
- ゆらぎの空間的な局在性（たとえば波数空間に局在したゆらぎなど）の制約をはずす

Unified Theory の適用例

FeSi の異常磁性、パイライト化合物 $\text{Co}(\text{S-Se})_2$ の磁化率の温度依存性の説明

しかし、この Unified Theory は局所状態密度という概念を用いることなどから 1 電子個別励起の描像を強く残し、さらに Static 近似を用いているために SCR 理論のような定量的な議論が可能な段階には未だ至っていない。

3 スピンの量子ゆらぎの効果

3.1 量子ゆらぎと熱ゆらぎ

3.1.1 スピンのゆらぎの総和則

ゆらぎの振幅に関する展開法に変わる原理として

SCR 理論ではスピンの熱ゆらぎの寄与は考慮されていても、はっきりとした形で量子ゆらぎ（零点ゆらぎ）の効果について考えられることはなかった。現在 SCR 理論に対して量子ゆらぎの効果を取り入れる試みがあるが、依然として式 (2.40) に見られるようなゆらぎの振幅についての Ginzburg-Landau 的な展開式から出発している。その結果、定性的な結論は量子ゆらぎを無視したときと変わらず、量子ゆらぎの効果は他のパラメーターに繰り込むことができ、従来の解析方法もそのまま正当化されると考えられている [11]。ゆらぎの振幅についての Ginzburg-Landau 的な展開は、スピンのゆらぎの振幅が小さいときに正しいと考えられる。

熱ゆらぎの振幅がいくら小さな値であっても、量子ゆらぎの振幅も同じように小さいということにはならない。例として、ここに典型的な弱い強磁性体であると考えられる MnSi について行われた 2 つの中性子非弾性散乱実験の結果を示す。

中性子散乱の散乱断面積は式 (2.37) に示したが、そこに現れる ω に関する因子（ボーズ因子） $(1 - e^{-\beta\hbar\omega})^{-1}$ の $\omega = 0$ に関する非対称性から中性子によるエネルギーの吸収 (gain) の過程だけを積分することにより、熱ゆらぎの寄与だけを直接測定することができる。

$$\langle S_i^2 \rangle_T \propto \int_0^\infty n(\omega) \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) d\omega = \int_{-\infty}^0 \frac{1}{1 - e^{-\beta\hbar\omega}} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) d\omega \quad (3.1)$$

Ishikawa らはこの方法によって中性子磁気非弾性散乱の測定から熱ゆらぎの成分だけを抽出し、図 9 に示すように熱ゆらぎの振幅が SCR 理論で期待されるように温度とともに増大することを明らかにした [12]。

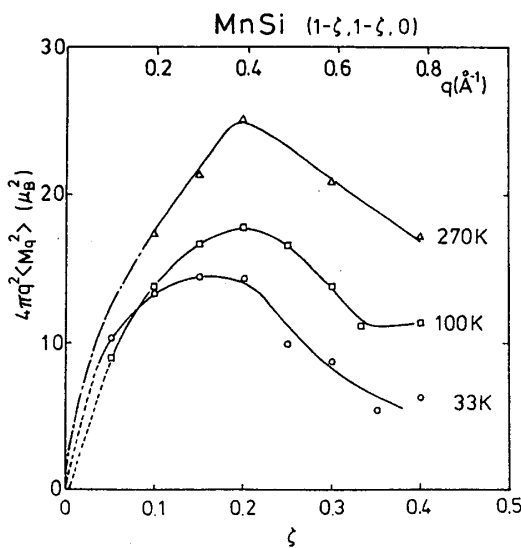


図 9: MnSi のスピンの熱ゆらぎの振幅の温度変化 (Ishikawa et al.)

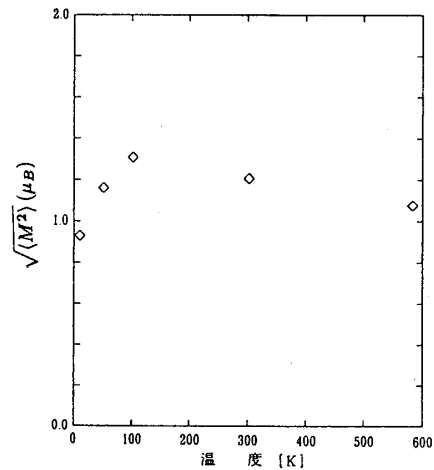


図 10: MnSi のスピンのゆらぎの振幅の温度変化 (Ziebeck et al.)

もう一つは Ziebeck らによる実験で、これは熱ゆらぎ、量子ゆらぎを成分ごとに分離することはせず、その両方のゆらぎを合わせた全てのゆらぎについてその強度をあるエネルギー範囲についてエネルギーについて積分した強度に相当する値を測定した [13]。図 10 に得られたスピンのゆらぎの振幅の温度変化を示す。この図によると、MnSi のスピンのゆらぎ $\sqrt{\langle S_i^2 \rangle}$ は T_C の上下ではっきりとした温度変化の傾向を示さないことが分かる。これら二つの実験結果は一見矛盾しているように見える。しかし、スピンの熱ゆらぎ成分は温度によって増大しても、スピンの量子ゆらぎ成分が温度とともに減少するため、両者の和 $\langle S_i^2 \rangle$ が温度によって変化していないと考えれば 2 つの実験をとともうまく説明できる。

量子ゆらぎのスペクトルは熱ゆらぎに比べて高エネルギー領域にまで広がっているので、量子ゆらぎの振幅を正確に求めるためにはより高エネルギー側の情報が必要となる。遍歴電子磁性体のスピンのゆらぎは高エネルギー領域まで連続的に分布しているので、その全体を正確に測定することは容易ではない。現在のところ、高エネルギー領域まで含めて熱ゆらぎ、量子ゆらぎがそれぞれどのような温度変化をするかということはあまり詳しくは調べられていない。

今述べたように考えると、上の 2 つの実験はつまり、これまで SCR 理論で主張されてきたこととは異なり、少し違った様相を示唆するものと考えられる。つまり、量子ゆらぎの振幅は低温で非常に大きな値をもち、またその値は温度変化を示し、温度が上昇するにつれて熱ゆらぎの増大を補うように減少するため、全体としてのスピンのゆらぎの振幅 $\langle S_i^2 \rangle$ はほぼ一定に保存されているように思われる。本当に遍歴電子磁性体のスピンのゆらぎ $\langle S_i^2 \rangle$ はこれまで考えられてきたように温度と共に増大するのであろうか。今まで考えられてきたよりも実際のその変化は、大変小さいものではないだろうかという疑問が生じてくる。

局在モーメントをもつ系のようにハイゼンベルグモデルで記述されるような系の場合、磁気的な温度 $T_m \sim J/k_B$ は、もともとのハバードモデルで考えたときのクーロン相互作用 U や Hund 則に関する結合エネルギーに比べて非常に低い温度にあたる。そのような温度領域では、各格子点で定義されているスピン演算子 S_i について $S_i^2 = S_i \cdot S_i$ の期待値は運動の恒量で $S(S+1)$ の値をもつ。それに対して金属磁性体の場合には S_i^2 の期待値が一定であることは一般に期待できることではない。しかし問題はこの期待値の変化がどのようなエネルギースケールで記述され、そのスケールが磁性で問題となるエネルギースケールと比較した場合どのような大小関係が成り立つかが重要となる。例えば SCR 理論でも、Stoner-Wohlfarth 理論で現れる電子の占有数の温度変化に起因する項 $(k_B T / \epsilon_F)^2$ の温度依存性を無視していることと同じことである。

遍歴電子磁性体を記述するもともとのハバードハミルトニアンには電子の飛び移り t とクーロン相互作用 U の二つのパラメーターが存在する。これらは通常 $\sim 10^4 K$ という大きな値を持つものに対し、磁気的な励起エネルギーは一般に数度 $K \sim$ 数 100 度 K の値で U や t に比べずっと低い値をもつ。以下で説明する金属磁性体の取り扱いについても、何らかの磁気的な励起エネルギーを特徴づける温度 T_m が存在し、この T_m が

$$k_B T_m \ll t, \quad k_B T_m \ll U \quad (3.2)$$

を満たすことを仮定する。我々が磁性体の性質として興味があるのは T_m でスケールされる温度領域である。

さらに、少し別な観点からも S_i^2 の期待値の温度変化について考えてみよう。まず、遍歴電子磁性体の場合にも磁性原子が存在する各格子点上において S_i^2 は S_i^α ($\alpha = x, y, z$) と交換することに注意する。これによって任意の波数 \mathbf{q} について S_i^2 は $S_{\mathbf{q}}$ と交換する。

$$[S_i^2, S_{\mathbf{q}}] = 0 \quad (3.3)$$

量子力学によれば、2つの演算子 A, B が交換する場合、ある量子状態、例えば B の固有状態 $|\beta\rangle$ に演算子 A を作用させても B に関する固有値は変わらない。つまりある状態にスピン演算子 S_q を作用させても、この操作により S_i^2 の期待値は変化しないことが期待される。従って、基底状態におけるこの振幅の期待値が ξ_0 の値であるとき、この状態に対して以下のような演算子を作用させることによって生成される状態

$$S_{q_1}^{\alpha_1} S_{q_2}^{\alpha_2} \cdots |\xi_0\rangle \quad (3.4)$$

における S_i^2 の期待値は、基底状態での期待値 ξ_0 と変わらないということが容易に分かる。つまり、遍歴電子磁性体の励起状態が基底状態に $S_{q_1}^{\alpha_1}$ 等を作用させて生成される状態の重ね合わせによって良く表現されるのであれば S_i^2 の期待値は温度によらず一定に保たれることが期待される。実際 Shiba による 1 次元ハバードモデルの数値計算や Hirsch の 2 次元有限クラスターに対するモンテカルロ計算の結果も $\langle S_i^2 \rangle$ が $(k_B T/W)^2$ (W : バンド幅) のスケールで変化するというを示し、この予想を支持しているように思われる [14, 15]。

このように磁氣的性質に関係する低いエネルギースケールで $\langle S_i^2 \rangle$ の値はほぼ一定と考えられる。以下の議論ではこの値が常に一定値に保たれるものと仮定した上で磁氣的性質を議論する [4]。

3.1.2 スピンのゆらぎの振幅

熱ゆらぎ、量子ゆらぎを前に述べたように次のように定義する。

$$\langle S_i^2 \rangle = \langle S^2 \rangle_T + \langle S^2 \rangle_Z \quad (3.5)$$

$$\langle S_i^2 \rangle_T = \frac{6\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \frac{1}{e^{\beta\hbar\omega} - 1} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (3.6)$$

$$\langle S_i^2 \rangle_Z = \frac{3\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (3.7)$$

ゆらぎのスペクトル分布の変化

弱い強磁性体、反強磁性体などの遍歴電子磁性体を対象として考え、動的磁化率のスペクトルとしてはこれまでの議論と同様に式 (2.24)~(2.28) で表されるような Lorentz 型のものを仮定する。また、後で便利なようにスピンのゆらぎのスペクトルを特徴づけるパラメーターを以下のように導入しておく。

$$y = \kappa^2/q_B^2, \quad t = T/T_0 \quad (3.8)$$

$$T_0 = \frac{\hbar\Gamma_0 q_B^{\alpha+2}}{2\pi k_B}, \quad T_A = \frac{N_0 A q_B^2}{2k_B \chi_0} = \frac{N_0 q_B^2}{2k_B \kappa^2 \chi(\mathbf{Q}, 0)} \quad (3.9)$$

ここで、 $y = \kappa^2/q_B^2 = N_0/[2k_B T_A \chi(\mathbf{Q}, 0)]$ であるから y は磁化率の逆数を無次元化したようなパラメータである。 α の値は、強磁性か反強磁性に応じてそれぞれ 1 または 0 をとるものとする。 \mathbf{Q} は反強磁性の場合にはその反強磁性波数ベクトルを表し、強磁性のときは $\mathbf{Q} = 0$ である。

これらのパラメーターを用いると、静磁化率 $\chi(\mathbf{Q} + \mathbf{q}, 0)$ 、減衰定数 $\Gamma_{\mathbf{Q}+\mathbf{q}}$ の波数と周波数による展開式 (式 (2.25)、(2.27)) は以下のように表すことができる。

$$\chi(\mathbf{Q} + \mathbf{q}, 0) = \frac{N_0}{2k_B T_A} \frac{1}{y + x^2} \quad (3.10)$$

$$\begin{aligned}\Gamma_{\mathbf{Q}+\mathbf{q}} &= \frac{2\pi k_B T_0}{\hbar} x^\alpha (y+x^2) = \frac{2\pi k_B T u(x)}{\hbar} = \frac{2\pi k_B T_0 v(x)}{\hbar} \\ u &= x^\alpha (y+x^2)/t, \quad v = x^\alpha (y+x^2) \\ x &= q/q_B\end{aligned}$$

ここで q_B はブリルアンゾーンを球で近似したときの半径を表す。動的磁化率の虚部は以下のように表すことができる。

$$\begin{aligned}\text{Im}\chi(\mathbf{Q}+\mathbf{q}, \omega) &= \frac{1}{2k_B T} \frac{T_0}{T_A} \frac{\xi x^\alpha}{\xi^2 + u^2} \\ &= \frac{1}{2k_B T_0} \frac{T_0}{T_A} \frac{\zeta x^\alpha}{\zeta^2 + v^2} \\ \xi &= \hbar\omega/2\pi k_B T, \quad \zeta = \hbar\omega/2\pi k_B T_0\end{aligned}\tag{3.11}$$

動的磁化率の式の中には磁気相関長の逆数を表すパラメーター κ が入っているが、式 (3.9) から分かるように、磁化率がキュリーワイス則に従うような温度変化をすると κ の二乗は

$$\kappa^2 = \frac{N_0 q_B^2}{2k_B T_A \chi(\mathbf{Q}, 0)} \propto (T - T_c)\tag{3.12}$$

のような温度変化をする。また磁場をかけることによっても κ の値は変化し、 κ の値の増大によりスピンのゆらぎのスペクトル強度は低エネルギー領域において抑制される。ここで注意すべきことはこの κ の変化によって動的磁化率のスペクトル分布の形は変化し、それによって量子ゆらぎの振幅も熱ゆらぎの場合と同様に温度や磁場によって変化するということである。このような温度や磁場によってゆらぎのスペクトル形状が変化する効果を無視して、ボーズ分布による集団励起の占有数の変化だけを考慮したのがパラマグノン効果の研究で用いられた方法である。SCR 理論ではこのスペクトル分布の変化の影響を積極的に取り入れようと考えたが、熱ゆらぎの寄与についてだけ考慮するにとどまっている。以下ではゆらぎの振幅 $\langle S_i^2 \rangle$ が一定という条件のもとでゆらぎのスペクトルが変化したとき、どのような結果が得られるかについて調べる。

3.1.3 スピンの熱ゆらぎ

スピンの熱ゆらぎの成分について、特に低温や磁気臨界温度近傍でゆらぎが温度や外部磁場からどのような影響を受けるかについて調べることにする。温度についての影響は、ボーズ因子を通した直接の温度依存性と温度による磁気相関距離の変化、つまりパラメータ $y (= \kappa^2/q_B^2)$ を通した間接的な依存性が期待される。磁場効果については、 y の磁場依存性を反映した間接的なものだけとなる。スピンのゆらぎのスペクトルの式 (3.11) を熱ゆらぎの式 (3.6) に代入すると、熱ゆらぎの振幅は次のように表すことができる。

$$\begin{aligned}\langle S^2 \rangle_T &= \frac{6T_0 d}{T_A} \int_0^1 x^{d-1+\alpha} dx \int_0^\infty d\xi \frac{\xi}{e^{2\pi\xi} - 1} \frac{1}{\xi^2 + u^2} \\ &= \frac{3T_0 d}{T_A} \int_0^1 x^{d-1+\alpha} dx \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right]\end{aligned}\tag{3.13}$$

ここで d は系の次元を表す。上の式において ξ に関する積分を実行する際に、ダイガンマ関数 $\psi(z)$ の積分表示

$$\psi(z) = \ln z - \frac{1}{2z} - 2 \int_0^\infty \frac{t dt}{(t^2 + z^2)(e^{2\pi t} - 1)}, \quad (z > 0)\tag{3.14}$$

を用いた。

臨界点近くにおけるゆらぎ

磁気臨界点近傍では、 $x \sim 0$ 近傍の積分からくるゆらぎの振幅が $y \rightarrow 0$ の場合に特異なふるまいをすることが期待される。 x の関数と見たとき式 (3.13) の被積分関数は、 $x \sim 0$ 近傍で以下のように近似できることがわかる。

$$x^{d-1+\alpha} \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] \sim \frac{t}{2} \frac{x^{d-1}}{y+x^2} \quad (3.15)$$

$y=0$ とおいたときこの関数は、 x^{d-3} のふるまいとなるので、 $d > 2$ の場合は、 $y=0$ としても積分は定義でき、ある一定の値となる。次元 d の値が 2 以下の場合には積分が原点近傍で発散し、 $y=0$ の値を定義することはできない。

熱ゆらぎの臨界点近傍の y 依存性に関する特異性は表 4 のようにまとめることができる。

次元 d	$T_A \langle \mathbf{S}^2 \rangle_T / (3T_0 d)$
3	$C(\nu, t_c) - \pi t \sqrt{y}/4$
2	$(t/4) \ln(t^{2/3}/y)$
1	$\pi t / (2y^{1/2})$

表 4: 臨界温度近傍の熱ゆらぎの y 依存性。

$$C(\nu, t_c) = \frac{C(\nu)}{2+\alpha} t_c \quad (t_c \ll 1) \quad (C(\nu) \text{ は式 (3.18) 参照})$$

$d \leq 2$ の次元では $t > 0$ のとき熱ゆらぎの振幅が発散的な増大を示し、有限温度においては磁気秩序が発生しないことを意味している。

臨界点におけるゆらぎの振幅

$d > 2$ のときは、 $y=0$ での熱ゆらぎの振幅の値を定義することができる。この臨界点における振幅の値は以下のように計算することができる。式 (3.13) の積分変数を適当に変更すると熱ゆらぎの振幅の t 依存性は以下のように表すことができる。

$$\langle \mathbf{S}^2 \rangle_T = \frac{3T_0 d}{(2+\alpha)T_A} t^\nu \int_0^{1/t} du u^{\nu-1} [\ln u - 1/2u - \psi(u)], \quad \nu = (d+\alpha)/(2+\alpha) \quad (3.16)$$

上の式の u に関する積分は $t \ll 1$ のとき次のように与えられる。

$$\langle \mathbf{S}^2 \rangle_T = \frac{3T_0 d}{T_A} \frac{C(\nu)}{2+\alpha} t^\nu, \quad \nu = (d+\alpha)/(2+\alpha) \quad (3.17)$$

定数 $C(\nu)$ の値は

$$\begin{aligned} C(\nu) &= \frac{\pi \zeta(\nu) \Gamma(\nu)}{(2\pi)^\nu \sin(\frac{\nu\pi}{2})} \\ C(4/3) &= 1.006089 \dots \\ C(5/3) &= 0.562992 \dots \\ C(3/2) &= 0.653093 \dots \end{aligned} \quad (3.18)$$

によって与えられる。 $\zeta(\nu)$ はゼータ関数、 $\Gamma(\nu)$ はガンマ関数を表す。 $d=3$ の場合、強磁性、反強磁性のそれぞれについて、臨界点における熱ゆらぎの振幅は $t \ll 1$ の極限で以下のように与えられる。

$$\langle S^2 \rangle_T = \begin{cases} \frac{3T_0}{T_A} C(4/3) t^{4/3}, & \text{強磁性のとき} \\ \frac{9T_0}{2T_A} C(3/2) t^{3/2}, & \text{反強磁性のとき} \end{cases} \quad (3.19)$$

3.1.4 スピンの量子ゆらぎ

SCR 理論では、スピンのゆらぎのスペクトルが変化する効果が磁化率のキュリーワイス的な温度依存性を導出する際に重要でと考えたが、量子ゆらぎに対してはこうした効果は無視できると仮定した。ここでは、量子ゆらぎを考える場合にもこの効果がきわめて重要であることを示す。既に触れたように、温度や磁場の影響によるゆらぎのスペクトル変化は磁気相関長の変化を通して考慮されるので、量子ゆらぎの振幅の y 依存性を調べるのがここでの目的である。

量子ゆらぎの式 (3.7) に動的磁化率の式 (3.11) を代入することにより、量子ゆらぎの振幅は以下のように表される。

$$\begin{aligned} \langle S^2 \rangle_Z &= \frac{3T_0 d}{T_A} \int_0^1 x^{d-1+\alpha} dx \int_0^{\zeta_c} d\zeta \frac{\zeta}{\zeta^2 + v^2} \\ &= \frac{3T_0 d}{2T_A} \int_0^1 x^{d-1+\alpha} dx [\ln(\zeta_c^2 + v^2) - 2 \ln v] \end{aligned} \quad (3.20)$$

$$v = x^\alpha (y + x^2) \quad (3.21)$$

Lorentz 型のスペクトルの形を高エネルギー領域まで用いると、積分の上限から対数的な発散が生ずることを考慮して、適当なエネルギーの上限値 ζ_c が存在することを仮定している。Lorentz 型のスペクトルは、減衰定数の振動数 ω 依存性は無視して得られているが、実際は高いエネルギー領域においては ω 依存性は無視することはできず、この効果を考慮することにより、 ω 積分の上限近傍からくる発散はなくなる。このような効果をここでは簡単に上限値を設定するという形で取り入れたことになっている。

上の式を用いると、量子ゆらぎの y 依存性が適当な関数 $Z(y)$ を導入して以下のように書けることがわかる。

$$\langle S^2 \rangle_Z(y) = \langle S^2 \rangle_Z(0) - \frac{3T_0 d}{T_A} Z(y) \quad (3.22)$$

$y \sim 0$ のとき $Z(y)$ は以下のように与えられる。

$$Z(y) = \begin{cases} \frac{1}{d-2+\alpha} y + \dots & d > 2 - \alpha \text{ のとき} \\ \frac{1}{2} y [\ln(1/y) + 1] + \dots & d = 2 - \alpha \text{ のとき} \\ \pi y^{1/2} & d = 1 - \alpha \text{ のとき} \end{cases} \quad (3.23)$$

従って、量子ゆらぎの振幅は温度の上昇や外部から磁場をかけることにより、一般に抑制される傾向があることがわかる。

3.1.5 熱ゆらぎ vs 量子ゆらぎ

熱ゆらぎと量子ゆらぎのそれぞれの特徴は次のように述べることができる。

- 熱ゆらぎ

スペクトルの低エネルギー部分 ($0 \leq \hbar\omega \leq k_B T$) に対応するゆらぎで、ゆらぎの遅い運動を表す。この意味から、古典的な運動で、磁気秩序の原因にもなる。

- 量子ゆらぎ

エネルギーの広いスペクトル領域に渡って分布するゆらぎを表す。ゆらぎの速い運動の成分に対応し、量子論的である。秩序にはなりにくく、秩序に対する妨げ、減衰の効果となる。

これまでに導かれた結果から、次のような興味ある事実がわかる。つまり、量子ゆらぎと熱ゆらぎの振幅の比の値が、臨界温度とスピンのゆらぎのパラメータ T_0 の比 T_c/T_0 で決まるということである。ハイゼンベルグモデルで記述される絶縁体磁性の場合は、磁気的性質を決めるエネルギースケールが交換相互作用定数 J で与えられることがわかっている。臨界温度 $k_B T_c$ の値や、スピンのゆらぎのスペクトルのエネルギーと波数空間における分布の幅なども、すべて J 程度の値をもつと考えられる。したがって、上で定義した T_0 、 T_A のどちらの値も $\sim J/k_B$ で与えられる。 $T_c \sim J/k_B$ であることを考慮すると、ゆらぎのスペクトル分布の大部分は $0 \sim k_B T_c$ の範囲にあると考えることができ、このような場合の熱ゆらぎと量子ゆらぎの振幅はそれぞれ次のように与えられる。

$$\langle S_i^2 \rangle_Z = \frac{3}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \text{Im} \chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (3.24)$$

$$\langle S_i^2 \rangle_T \sim \frac{6}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \frac{k_B T}{\hbar \omega} \text{Im} \chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (3.25)$$

この式からわかることは、熱ゆらぎの方は $k_B T/\hbar \omega$ の因子により量子ゆらぎに比べ大きな値となり、全ゆらぎの振幅の大部分を占めることになることである。この振る舞いは臨界温度以上の温度 $T > T_c$ においても成り立つ。

一方、弱い強磁性、反強磁性として分類されている磁性体は、これまでの研究から T_c/T_0 の値がすべて大変小さな値をもつことが知られている。従って、この場合は臨界点における熱ゆらぎの振幅は全体のゆらぎの中でごく一部を占めるにすぎない。少しくらい温度を上げて量子ゆらぎの振幅がゆらぎの大部分を占める傾向を変えるまでには至らない。

このように考えると、弱い強磁性体、反強磁性体はハイゼンベルグモデルで記述される磁性体とは異なり、常にゆらぎが支配的な系であると見ることができる。これは非常に重要なことを意味しているように思われる。このようにゆらぎの大きな系を取り扱うときに、分子場がはつきり定義されるときに正当化される Hartree-Fock 近似を出発点に選びゆらぎの寄与をそれに対する補正として考慮するような方法は、その適用性について再検討を要すると思われる。

	熱ゆらぎの支配的な系	量子ゆらぎの支配的な系
熱ゆらぎの振幅	$\langle S_i^2 \rangle_T \sim O(1)$	$\langle S_i^2 \rangle_T \ll 1$
量子ゆらぎの振幅	$\langle S_i^2 \rangle_Z \ll 1$	$\langle S_i^2 \rangle_Z \sim O(1)$
T_c/T_0 の比の値	$T_c/T_0 \sim 1$	$T_c/T_0 \ll 1$

表 5: 臨界温度 $T = T_c$ におけるスピンのゆらぎの振幅

3.2 基底状態における磁化過程

これまでに見てきたスピンのゆらぎの性質を利用して、遍歴電子磁性体の磁氣的性質をいかに説明するかということがこれからの話の焦点である。これまでの議論では磁気秩序が存在しない常磁性状態を仮定してきた。まず最初に磁気秩序が存在する場合の取り扱いの方法について述べる。2次元以下においては、有限温度では磁気秩序は発生しないので、ここでは3次元の場合だけを取り扱うことにする。

Hartree-Fock 近似では、1 電子の個別励起の描像を基に自由エネルギー $F(M, T)$ を磁化 M の関数として求めた。この M 依存性が基底状態の磁化過程を決定することになる。この事情は、基底状態に関しては SCR 理論も全く同様である。また、この展開式の M^4 に比例する項の係数 \bar{F}_1 が SCR 理論では重要なパラメータとなるが、この値は 1 電子状態密度曲線のフェルミ面近傍のエネルギー依存性から計算できると考えている。ここでは、基底状態についても磁化過程が一般にこれとは全く異なる事情によって決まることを示すことになる。

まず、磁気秩序が発生した場合を理論的に取り扱う上で考慮しなくてはならない点を以下に挙げる。

1. 秩序パラメータの発生

ある波数 \mathbf{Q} をもつ自発磁化が発生すると、スピン演算子はこれに対応した有限の熱平均値をもち、スピンのゆらぎは以下のようにその熱平均値（磁化）からの差として定義されることになる。

$$\mathbf{S}_{\mathbf{q}} = \langle \mathbf{S}_{\mathbf{Q}} \rangle \delta_{\mathbf{q}, \mathbf{Q}} + \delta \mathbf{S}_{\mathbf{q}}, \quad \langle \delta \mathbf{S}_{\mathbf{q}} \rangle = 0 \quad (3.26)$$

したがって、この場合のスピンの振幅の値は、次のようになる

$$\langle S_i^2 \rangle = \frac{1}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \langle \mathbf{S}_{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{S}_{-\mathbf{q}} \rangle = |\sigma_{\mathbf{Q}}|^2 / 4 + \frac{1}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \langle \delta \mathbf{S}_{\mathbf{q}} \cdot \delta \mathbf{S}_{-\mathbf{q}} \rangle \quad (3.27)$$

$$\sigma_{\mathbf{Q}} = 2 \langle \mathbf{S}_{\mathbf{Q}} \rangle / N_0 \quad (3.28)$$

2. 異方的なスピンのゆらぎ

3.2.1 節で述べるように、自発磁化の発生に伴い自由エネルギーの磁化に関する 2 次の微係数は等方的でなくなる。つまり、自発磁化と平行に磁場をかけた場合と、垂直の方向に磁場をかけた場合とで磁化率の値に違いが生ずる。

3. スピン波の存在

波数空間の一部において、寿命の長い固有振動モードが現れる。ゆらぎの振幅を計算する場合、スピン波による寄与とエネルギー的に分布をもった励起による寄与と両方の寄与を考慮に入れなければならない。ただし、発生する自発磁化の値が小さな場合はスピン波の存在する領域は波数空間のごく一部に限られ、それ以外の寄与と比較して実質的に無視できることもある。とくに弱い強磁性体、反強磁性体はこの場合に対応し、スピン波によるゆらぎの振幅への寄与は無視できると考えられていた。しかし、磁気秩序状態を記述する上でスピン波の存在を考慮することが重要であると最近の研究で指摘されている。

3.2.1 横磁化率と縦（高磁場）磁化率

自発磁化が発生すると、常磁性状態では等方的であった磁化率は自発磁化に平行に磁場をかけた場合と、垂直にかけた場合とで磁化率の値に違いが生ずることについて上で述べた。磁化と平行に

磁場をかけた場合の磁化率を縦磁化率 (または高磁場磁化率) と呼び、垂直にかけた場合の磁化率を横磁化率と呼ぶことにする。スピン空間に関して回転対称性が系に存在する場合、これらの磁化率が磁化 M や、磁場 H とどのような関係にあるかを以下に述べる。とりあえず簡単のために強磁性の場合についてまず考えることにする。

ハミルトニアンが回転対称性をもつ場合、磁化 \mathbf{M} の関数として表した自由エネルギー $F(M)$ は、磁化の絶対値 M だけの関数としてあらわされる。 M の値は、各成分と以下の関係がある。

$$M^2 = M_x^2 + M_y^2 + M_z^2 \quad (3.29)$$

磁化の方向が z -軸方向を向いているとした場合、つまり成分で表したとき $\mathbf{M} = (0, 0, M)$ の場合について縦、および横磁化率がどのように与えられるかをみるために、自由エネルギーの 2 次導関数がどのように与えられるかを以下に示す。ただし、外部磁場 H が存在し、熱力学的な関係から以下の式が成り立つものとする。

$$\frac{\partial F}{\partial M} = H \quad (3.30)$$

まず 1 階の微係数はそれぞれの成分毎に次のように与えられる。

$$\frac{\partial F}{\partial M_x} = \frac{\partial F}{\partial M} \frac{\partial M}{\partial M_x} = \frac{\partial F}{\partial M} \frac{M_x}{M} = 0 \quad (3.31)$$

$$\frac{\partial F}{\partial M_y} = 0 \quad (3.32)$$

$$\frac{\partial F}{\partial M_z} = \frac{\partial F}{\partial M} \frac{\partial M}{\partial M_z} = \frac{\partial F}{\partial M} \frac{M_z}{M} = \frac{\partial F}{\partial M} = H \quad (3.33)$$

$$(3.34)$$

上の導関数をさらに磁化について微分することに、2 階の微係数の値がそれぞれの成分毎に以下のように求められる。

$$\frac{\partial^2 F}{\partial M_x^2} = \frac{\partial^2 F}{\partial M^2} \left(\frac{M_x}{M} \right)^2 + \frac{1}{M} \frac{\partial F}{\partial M} \left(1 - \frac{M_x^2}{M^2} \right) \quad (3.35)$$

$$= \left(\frac{M_x^2}{M^2} \right)^2 \left(\frac{\partial^2 F}{\partial M^2} - \frac{1}{M} \frac{\partial F}{\partial M} \right) + \frac{1}{M} \frac{\partial F}{\partial M} = \frac{1}{M} \frac{\partial F}{\partial M} = \frac{H}{M} \quad (3.36)$$

$$\frac{\partial^2 F}{\partial M_y^2} = \frac{H}{M} \quad (3.37)$$

$$\frac{\partial^2 F}{\partial M_z^2} = \frac{\partial^2 F}{\partial M^2} \left(\frac{M_z}{M} \right)^2 + \frac{1}{M} \frac{\partial F}{\partial M} \left(1 - \frac{M_z^2}{M^2} \right) \quad (3.38)$$

$$= \left(\frac{M_z^2}{M^2} \right)^2 \frac{\partial^2 F}{\partial M^2} + \frac{1}{M} \frac{\partial F}{\partial M} \left(1 - \frac{M_z^2}{M^2} \right) = \frac{\partial^2 F}{\partial M^2} = \frac{\partial H}{\partial M} \quad (3.39)$$

従って、自発磁化が発生すると磁化率は自発磁化に平行と垂直の場合で値に差が生じ、それぞれ $\partial H / \partial M$, H/M の逆数の値で与えられることになる。

自発磁化の発生により磁化率の値に異方性が生ずると、磁気相関長や、ゆらぎの動的性質を支配する減衰定数 Γ_q も同様に異方的になる。こうした効果を取り入れるために、磁化に平行な方向と垂直な方向に対しそれぞれ対応する磁気相関長の逆数の値を以下のように導入することにする。

$$\kappa \rightarrow \begin{cases} \kappa & \text{自発磁化と垂直} \\ \kappa_z & \text{自発磁化と平行} \end{cases} \quad (3.40)$$

$$\Gamma_q \rightarrow \begin{cases} \Gamma_0 q(\kappa^2 + q^2) & \text{自発磁化と垂直} \\ \Gamma_0 q(\kappa_z^2 + q^2) & \text{自発磁化と平行} \end{cases} \quad (3.41)$$

同様に無次元化した磁化率の逆数に対応する y についても、磁化に平行と垂直のそれぞれの向きに対応した 2 つの量を次のように定義する。

$$\begin{aligned} y &= \kappa^2/q_B^2 = \frac{1}{k_B T_A} \frac{h}{\sigma} \\ y_z &= \kappa_z^2/q_B^2 = \frac{1}{k_B T_A} \frac{\partial h}{\partial \sigma} = y + \sigma \frac{\partial y}{\partial \sigma} \end{aligned} \quad (3.42)$$

スピンのゆらぎのスペクトルが異方的となっても、上のような取り扱いをする限りにおいては、それらの温度依存性や磁場依存性は相関距離を通して反映される。

3.2.2 基底状態における磁化過程

SCR 理論においては基底状態では熱ゆらぎはそもそも存在しないことから、ゆらぎの寄与による磁化過程への影響はない。何らかの繰り込み効果の存在は否定しないものの、その効果を具体的に扱うようなことはなされていない。自発磁化が存在する場合の取り扱いの簡単な例として、ここでは強磁性の場合について零点ゆらぎの寄与による基底状態の磁化過程を求める方法について述べる。

基底状態における磁化過程は次のようにして決まると考えられる。基底状態においては熱ゆらぎの振幅は存在しないので、 S_i^2 の期待値はスピンのゆらぎの振幅を用いて次のように表すことができる。

$$\langle S_i^2 \rangle = \langle \delta S_i^2 \rangle_T + \langle \delta S_i^2 \rangle_Z + \sigma^2/4 = \langle \delta S_i^2 \rangle_Z(y) + \sigma^2/4 \quad (3.43)$$

この期待値が一定値に保たれるために、量子ゆらぎの振幅が外部磁場によって抑えられるとその分だけ磁化 σ がそれを補うように増大していくと考えられる。

さらに詳しく調べるために、ゆらぎの振幅に関する保存則が量子ゆらぎの振幅に関する式 (3.22) を利用することにより次のように表すことができることに注意しよう。

$$\langle S_i^2 \rangle = \langle \delta S_i^2 \rangle_T + \langle \delta S_i^2 \rangle_Z(y) + \sigma^2/4 = \langle S_i^2 \rangle_Z(0) - \frac{3T_0}{2T_A}(2y + y_z) + \sigma^2/4 \quad (3.44)$$

この第 2 項は、磁場をかけたことにより零点ゆらぎの振幅が抑制される効果を表している。ゆらぎの振幅に関する保存則は臨界温度 ($t = t_c$, $y = y_z = 0$, $\sigma = 0$) について次の関係、

$$\langle S_i^2 \rangle = \langle S_i^2 \rangle_Z(0) + \langle S_i^2 \rangle_T(0, t_c) \quad (3.45)$$

が成り立つので、これを用いて上の基底状態におけるゆらぎの振幅に関する保存則 (式 (3.44)) は次のように書き換えることもできる。

$$\langle S_i^2 \rangle_T(0, t_c) = \sigma^2/4 - \frac{3T_0}{2T_A}(2y + y_z) \quad (3.46)$$

式 (3.42) で定義した逆磁化率 y と y_z の間の関係を考慮すると、上の式 (3.46) は y を σ の関数としたとき、 y についての 1 階の常微分方程式と見なすことができる。この方程式は、容易に次のような解

$$y = y_0 + y_1 \sigma^2, \quad (3.47)$$

が得られることが分かり、係数 y_0 および y_1 は

$$y_0 = -\frac{2T_A}{9T_0} \langle S_i^2 \rangle_T(0, t_c), \quad y_1 = \frac{T_A}{30T_0} \quad (3.48)$$

で与えられる。

外部磁場が存在しない場合は、 $T_A y = h/\sigma = 0$ が成り立つので基底状態における自発磁化の値 σ_s^2 は $-(y_0/y_1)$ で与えられ、式 (3.48) の結果を用いると σ_s^2 は臨界温度における熱ゆらぎの振幅と次のような関係のあることがわかる。

$$\frac{\sigma_s^2}{4} = -\frac{1}{4} \frac{y_0}{y_1} = \frac{5}{3} \langle S_i^2 \rangle_T(0, t_c) \quad (3.49)$$

求められた係数の値を用いて、 y と y_z を σ の関数として表すと次のようになる。

$$\begin{aligned} y &= y_1(-\sigma_s^2 + \sigma^2) = \frac{T_A}{30T_0}(-\sigma_s^2 + \sigma^2) \\ y_z &= y + 2y_1\sigma^2 = \frac{T_A}{30T_0}(-\sigma_s^2 + 3\sigma^2) \end{aligned} \quad (3.50)$$

横磁化率 $y \propto H/M$ の関係から、上の結果は基底状態における磁化過程を導いたことになる。 y が σ の 2 次までの関数で求められたことは、自由エネルギーが磁化 M について 4 次までの展開の形で求められたことに対応する。

一方、自由エネルギー $F(M)$ は

$$F(M) = \frac{1}{2(g\mu_B)^2\chi} M^2 + \frac{1}{4(g\mu_B)^4} \mathcal{G} M^4 \quad (3.51)$$

と表すことができ、熱力学的関係式から

$$H = \frac{\partial F(M)}{\partial M} = \frac{1}{(g\mu_B)^2\chi} M + \frac{\mathcal{G}}{(g\mu_B)^4} M^3 \quad (3.52)$$

が成り立つ。これを h と σ の関係式の形に書き直すと

$$h = \frac{(g\mu_B)(N_0\mu_B)}{(g\mu_B)^2\chi} \sigma + \frac{(g\mu_B)(N_0\mu_B)^3\mathcal{G}}{(g\mu_B)^4} \sigma^3 = \frac{N_0}{2\chi} \sigma + \frac{k_B\bar{F}_1}{8} \sigma^3 \quad (3.53)$$

$$\bar{F}_1 = \mathcal{G} N_0^3 / k_B \quad (3.54)$$

が成り立ち、従って y と σ の関係として

$$y = \frac{1}{k_B T_A} \frac{h}{\sigma} = \frac{N_0}{2\chi k_B T_A} + \frac{\bar{F}_1}{8T_A} \sigma^2 \quad (3.55)$$

が得られる。式 (3.50) と式 (3.55) の σ^2 の係数を比較することにより、自由エネルギーを磁化 M で展開したときの 4 次の展開係数に関して最終的に次の関係が導かれる。

$$\bar{F}_1 = \frac{4T_A^2}{15T_0} \quad (3.56)$$

磁化過程の Arrott プロット

図 2 に示したように、自由エネルギーが磁化の 4 次までのベキ展開でよく表される場合には、縦軸に M^2 の値をとり横軸 H/M に対してプロットすると各温度ごとにデータはひとつの直線上に載ると考えられる。

従来の 1 電子近似による取り扱いにおいては、基底状態の自由エネルギーは磁化のベキ展開の形で求められ、磁化の値が小さいときには 4 次の項までの展開で良い近似が得られると考えられてきた。また、その展開係数は 1 電子状態密度曲線のフェルミ準位近傍のエネルギー依存性によって決まると考えられていた。

ここで考えた磁化過程のプロセスはこれまでの考えとは全く異なる。1 電子励起より、むしろスピンのゆらぎという集団励起の寄与の方に焦点が当てられている。磁場をかけることによりゆらぎの振幅が抑制されるが、振幅が一定である条件から、その減少したゆらぎの振幅が磁化の増大につながると考えている。つまり、磁場をかけたときに系の低エネルギーの磁気励起スペクトルがどのような影響を受けるかによって磁化過程が決まることになる。

ここで得られた結論をまとめると、

- 自由エネルギーの磁化による展開が 6 次以降の項がなく 4 次までの展開で表されることは、磁化の値が小さいときに成り立つことではなく、方程式を解くことにより理論から自動的に導かれることである。
- 4 次の展開係数は、状態密度曲線の形状に関係するのではなく、むしろスピンのゆらぎのスペクトル分布の性質と密接な関係がある。SCR 理論ではこの係数は理論の独立なパラメータであると考えられたのに対し、むしろゆらぎを特徴づけるスペクトルの形状に関係するパラメータの値から決まるものと考えられる。

実験的に何らかの方法で T_0 や T_A の値を求めることができれば \bar{F}_1 の値を上で導いた式を用いて評価することができる。一方、磁化過程を直接測定し、Arrott プロットの傾きから \bar{F}_1 の値を直接求めることもでき、この 2 つの値を比較することによってここで求めた関係式を実験的に確認することが可能である。いくつかの化合物でこのような比較がすでになされており、それによれば上の関係が多少の係数の違いだけでよく成り立つことが分かっている。(表 6 参照) 4 次の係数が状態密度によって決まると考えた場合、このような一致を導くのは極めて困難であると思われる。

	$T_C[K]$	$T_0[K]$	$T_A[K]$	$4T_A^2/15T_0[K]$	$\bar{F}_1[K]$
MnSi	30	231	2.08×10^3	5.0×10^3	8.2×10^3
Ni ₃ Al	41.5	3590	3.09×10^4	0.71×10^5	9.4×10^4
Sc ₃ In	5.5	565	1.18×10^4	0.66×10^5	1.6×10^3
ZrZn ₂	25	321	8.83×10^3	6.5×10^4	1.3×10^4
Y(Co _{0.87} Al _{0.13}) ₂	7	2290	1.16×10^4	1.57×10^4	2.1×10^4
Y(Co _{0.85} Al _{0.15}) ₂	40	2119	6.34×10^3	0.51×10^4	1.0×10^4
Y(Co _{0.83} Al _{0.17}) ₂	25	2093	7.03×10^3	0.63×10^4	1.6×10^4

表 6: 弱い強磁性体のスピンのゆらぎのパラメータ

3.2.3 臨界点における磁化過程

最後に臨界温度における磁化過程についてごく簡単に触れておく。キュリー温度においては、熱ゆらぎの y 依存性により磁化過程を決めるための方程式は

$$\sigma^2 = \frac{3\pi t_c}{T_A} (2\sqrt{y} + \sqrt{y_z}) \quad (3.57)$$

のようになる。この式を前と同様に微分方程式と考えるとこれを解くことにより

$$H \propto M^5 \quad (3.58)$$

の関係が成り立つことが導かれる。この比例係数の値も、基底状態の場合と同様に、スピンのゆらぎのスペクトルの分布を特徴づけるパラメータの値だけで決まることを示すことができる。式 (3.58) は、臨界温度においてはその磁化過程を Arrott プロットよりはむしろ M^4 対 H/M でプロットした方が直線性が良いということを意味している。図 12 に示されているように、このような関係が成り立つことは MnSi の臨界温度における磁化過程で実際に観測されている。

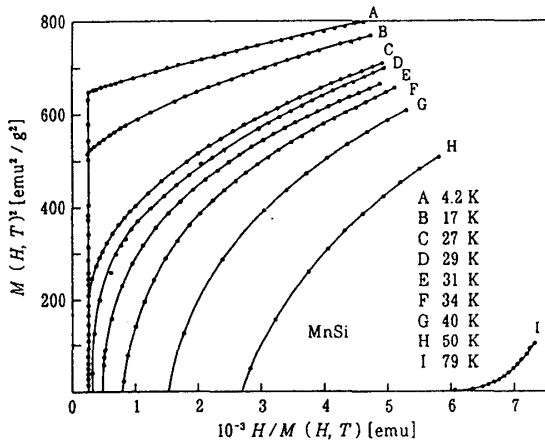


図 11: MnSi の Arrott プロット

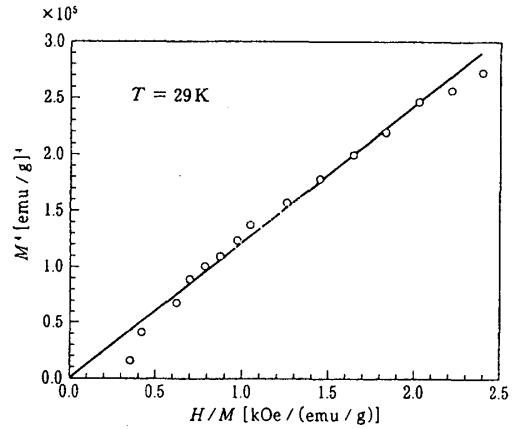


図 12: MnSi の M^4 vs H/M プロット

3.3 磁化率の温度依存性

ここでは、スピンのゆらぎの振幅の値がほぼ一定に保たれるという条件から磁化率の温度依存性を計算する方法について述べる。ここで得られる磁化率の温度依存性を表す方程式は SCR 理論で得られるものと形が良く似ている。ただし、基底状態における磁化過程がスピンのゆらぎの性質で決まることを見たように、方程式に現れるパラメータの解釈の仕方は両者で違いが存在する。

3.3.1 磁化率の温度変化の一般式

スピンの全ゆらぎの振幅を、次のように熱ゆらぎによる寄与と零点ゆらぎの寄与とに分け、

$$\langle S_i^2 \rangle = \langle S_i^2 \rangle_T(y, t) + \langle S_i^2 \rangle_Z(y) \quad (3.59)$$

さらにそれぞれの成分に対し、式 (3.13) と式 (3.22) を用いて次のように書き換えることができる。

$$\langle S_i^2 \rangle = \frac{3T_0 d}{T_A} \int_0^1 x^{d-1+\alpha} dx \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] + \langle S_i^2 \rangle_Z(0) - \frac{3T_0 d}{T_A} Z(y) \quad (3.60)$$

$$\int_0^1 x^{d-1+\alpha} dx \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] - Z(y) = \frac{T_A}{3T_0 d} [\langle S_i^2 \rangle - \langle S_i^2 \rangle_Z(0)] \equiv s_0 \quad (= const.) \quad (3.61)$$

d は次元の値、 α の値は強磁性か反強磁性かにより 1 または 0 をとる。臨界温度 ($y = 0$) における量子ゆらぎの振幅と全ゆらぎの振幅の差を示すパラメータとして s_0 を導入した。臨界温度では $Z(y) = 0$ となるので s_0 は熱ゆらぎの振幅と次のような関係にあることが分かる。

$$s_0 = \frac{T_A}{3T_0d} [\langle S_i^2 \rangle - \langle S_i^2 \rangle_Z(0)] = \frac{T_A}{3T_0d} \langle S_i^2 \rangle_T(0, t_c) \quad (3.62)$$

(3.61) 式は、温度によって熱ゆらぎの振幅が増大すると、ゆらぎのスペクトル形が変化し、それによって量子ゆらぎの振幅が減少することによって全振幅の値が一定に保たれることを示している。また、このことから磁化率の逆数 y の温度依存性が求められる。つまり、ゆらぎのスペクトル形は y の値を通してのみ変化するので、(3.61) 式を満たす y の値を求めることにより、 y の t -依存性が計算できる。特に $d > 2 - \alpha$ が成り立つとき (3.61) は以下ようになる。

$$s_0 = \int_0^1 x^{d-1+\alpha} dx \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] - \frac{1}{d-2+\alpha} y \quad (3.63)$$

SCR 理論では式 (2.47) のように、上式の右辺第 2 項の y に比例する項にあたる係数 ($\propto \bar{F}_1^{-1}$) は独立なパラメータであると考えられている。上の式では、 y 係数の値は式 (3.63) のように量子ゆらぎの y 依存性から決まることになるので、スピンのゆらぎのスペクトル形を特徴づけるパラメータを用いて表すことができる。このことから、以下で述べるように磁化率の温度依存性について興味ある結論が導かれる。

3.1 節で求めた熱ゆらぎの振幅と零点ゆらぎの振幅の振る舞いについての結果を用い、一般的な y の温度依存性について述べる。 y の t -依存性は、 s_0 の符号により大きく 2 通りに分けて考えることができる。

1. $s_0 < 0$ の場合

この場合磁気秩序は発生せず、 y の値は常に正の値をもつ。温度の減少と共に y の値も減少するが、十分低い温度で y はある一定の正の値 y_0 に近づく。熱ゆらぎの振幅も温度と共に減少し、十分低温で 0 に近づく。従って、 y_0 と s_0 は次のように関係していることが分かる。

$$|s_0| = \begin{cases} y_0/(d-2+\alpha), & d > 2-\alpha \text{ のとき} \\ y_0[\ln(1/y_0) + 1]/2, & 2 \text{ 次元 反強磁性、1 次元 強磁性のとき} \\ \pi y_0^{1/2}, & 1 \text{ 次元 反強磁性のとき} \end{cases} \quad (3.64)$$

2. $s_0 > 0$ の場合

s_0 の値が正である場合は、 $d > 2$ のときにある臨界温度 $t = t_c$ で磁気秩序が発生する。 y の値はこの場合も温度の低下に伴い減少していき臨界温度 t_c で $y = 0$ ($\chi = \infty$) となる。 t_c の値が 1 に比べて十分小さいとき、式 (3.17) を使うと s_0 は t_c を用いて次のように近似できる。

$$s_0 = \frac{T_A}{3T_0d} \langle S_i^2 \rangle_T(0, t_c) = \frac{1}{2+\alpha} C(\nu) t_c^\nu, \quad \nu = (d+\alpha)/(2+\alpha) \quad (3.65)$$

臨界温度における熱ゆらぎの振幅と基底状態における自発磁化の値とを結び付ける関係 (式 (3.49)) を用いれば、臨界温度 t_c が σ_s^2 と次の関係をもつことを導くことができる。

$$\frac{\sigma_s^2}{4} = \frac{5T_0d}{(2+\alpha)T_A} C(\nu) t_c^\nu \quad (3.66)$$

$d \leq 2$ の場合には有限温度で y が 0 になることはないが、低温で y は極めて小さな値をもち、磁気相関長が発達した状態が実現される。十分低温での y の t 依存性は以下の式を y について解くことにより求めることができる。

$$s_0 = \begin{cases} (t/4) \ln(t^{2/3}/y) - y, & 2 \text{次元 強磁性のとき} \\ (t/4) \ln(t^{2/3}/y) - y[\ln(1/y) + 1]/2, & 2 \text{次元 反強磁性のとき} \\ \pi t/(2y^{1/2}) - y[\ln(1/y) + 1]/2, & 1 \text{次元 強磁性のとき} \\ \pi t/(2y^{1/2}) - \pi y^{1/2}, & 1 \text{次元 反強磁性のとき} \end{cases} \quad (3.67)$$

次節では 3 次元の弱い強磁性の場合について y の t 依存性をさらに詳しく見ていくことにする。

3.3.2 3 次元の弱い強磁性の場合

3 次元の弱い強磁性の場合の y の t 依存性は式 (3.63) に $d=3, \alpha=1$ を代入した次の方程式を解くことにより計算される。

$$\begin{aligned} s_0 &= \int_0^1 x^3 dx \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] - \lambda_z y, & \lambda_z &= \frac{1}{2} \\ u &= x(y + x^2)/t \end{aligned} \quad (3.68)$$

以下では s_0 の符号により 2 つの場合に分け、それぞれについて y の t -依存性について述べる。

1. 強磁性の発生の近傍 ($s_0 < 0$)

既に述べたようにこの場合 y は常に正であり強磁性が発生することはない。温度の低下に伴い y も減少するが、 $T=0$ で熱ゆらぎの振幅が 0 になるため、 y は低温の極限で $y_0 = |s_0|/\lambda_z = 2|s_0|$ に近づく。熱ゆらぎの振幅は以下に示すように低温で t^2 に比例した温度依存性を示す。

$$\begin{aligned} \int_0^1 x^3 dx \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] &\simeq \int_0^1 dx \frac{x^3}{12u^2} = \frac{t^2}{12} \int_0^1 dx \frac{x}{(y + x^2)^2} \\ &= \frac{t^2}{24y(1+y)} \end{aligned} \quad (3.69)$$

これを式 (3.68) に代入して、低温での y の t 依存性は

$$y = y_0 + \frac{t^2}{12y_0(1+y_0)}, \quad (y_0 = |s_0|/\lambda_z) \quad (3.70)$$

で与えられる。 y の低温での t^2 の係数は、系が磁気不安定点に近づくにつれて $1/y_0$ に比例して増大する。

2. 強磁性が発生する場合 ($s_0 > 0$)

弱い強磁性体では一般に $t_c \ll 1$ なので、式 (3.66) に $\alpha=1, \nu=4/3$ を代入して

$$\frac{\sigma_s^2}{4} = \frac{5T_0}{T_A} C(4/3) t_c^{4/3} \quad (3.71)$$

が得られる。

次に、臨界温度近傍の磁化率の温度依存性について調べてみよう。臨界温度近傍では、 $t \sim t_c$ 、 $y \sim 0$ が成り立つので、すでに説明した結果を利用して（表 4 参照）熱ゆらぎの振幅の温度依存性と y 依存性は次のように表すことができる。

$$\langle S_i^2 \rangle_T = \frac{3T_0 d}{T_A} \int_0^1 x^3 dx \left[\ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] \simeq \frac{3T_0 d}{T_A} \left(\frac{C(4/3)}{3} t^{4/3} - \frac{\pi t_c}{4} \sqrt{y} \right) \quad (3.72)$$

式 (3.72) を式 (3.68) に代入し、また式 (3.68) の零点ゆらぎの寄与による y に比例した項が、熱ゆらぎによる \sqrt{y} の項と比べ無視できると考えて、臨界領域における y の t 依存性を与える次の関係式を得る。

$$\frac{\pi t_c}{4} \sqrt{y} \sim \frac{C(4/3)}{3} (t^{4/3} - t_c^{4/3}) \quad (3.73)$$

これを解いて、 y の t 依存性が以下のように得られる。

$$y \simeq \left\{ \frac{4C(4/3)}{\pi t_c} (t^{4/3} - t_c^{4/3}) \right\}^2 \simeq \left\{ \frac{16C(4/3)t_c^{1/3}}{3\pi} (t/t_c - 1) \right\}^2 \quad (3.74)$$

3. 磁化率のキュリーワイス則

低温や、臨界温度近傍以外の任意の温度 t に対して y の値を t の関数として求めるには式 (3.68) を数値的に解く必要がある。実際計算してみると、図 13 に示すように比較的広い範囲で y が t に比例するように見える領域が存在していることがわかる。これは、磁化率がキュリーワイス則に従うような温度依存性を示すことに対応している。

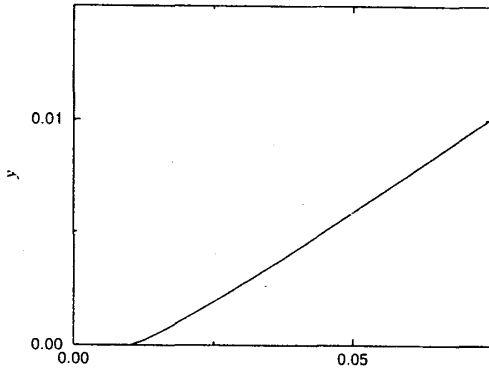


図 13: 磁化率の温度依存性

式 (3.71)、式 (3.49) に $\sigma_s = m_s/gN_0 = m_s/2N_0$ 、 $t_c = T_C/T_0$ を代入すると

$$T_C = \left(\frac{1}{5C(4/3)} \right)^{3/4} \left(\frac{m_s}{N_0} \right)^{3/2} T_A^{3/4} T_0^{1/4} \quad (3.75)$$

$$\langle S_i^2 \rangle_T(0, t_c) = \frac{3}{5} \left(\frac{m_s}{N_0} \right)^2 \quad (3.76)$$

が得られ、また式 (3.68) に式 (3.8)、(3.9)、(3.13)、(3.56)、(3.62) を代入して書きかえると

$$\frac{N_0}{\chi(T)} = \frac{5}{3} k_B \bar{F}_1 \left[\langle S_i^2 \rangle_T - \langle S_i^2 \rangle_{T=T_C} \right] \quad (3.77)$$

となる。これらはそれぞれ SCR 理論の式 (2.52)、(2.47)、(2.48) と全く同じ形をしていることが分かる。

SCR 理論と今ここで説明している理論は、すでに述べたようにその出発点が互いに全く異なっている。今している説明では、量子ゆらぎの寄与を考慮に入れることにより全ゆらぎの振幅が温度に依らず一定であると考えている。それに対し、SCR 理論ではゆらぎの振幅が小さいと考え、振幅が小さいときに成り立つと考えられる式 (2.40) から出発し、振幅の大きさに関する展開の高次の項の寄与を取り入れることになる。常磁性領域では熱ゆらぎの振幅が温度とともに増大し、量子ゆらぎの振幅は一定と考え、両方あわせた全ゆらぎの振幅も同じように温度と共に増大するという結論が得られる。熱ゆらぎ、量子ゆらぎそれぞれの振幅の温度変化は中性子非弾性散乱によって直接観測可能であり、今後さまざまな遍歴電子磁性体に対しゆらぎのスペクトルの波数および周波数依存性を明らかにする実験が行われることが強く望まれる。

一方これら 2 つの理論から導かれる結果について比較して見るために、三次元の弱い強磁性の磁化率の温度依存性の場合を取り上げてみると、上で示したように両方とも全く同じような式が得られている。どちらも式に含まれる 4 つのパラメーター m_s 、 \bar{F}_1 、 T_0 、 T_A の値が決まってしまうえば磁化率の温度依存性を同じ式を用いて計算することができる。 T_C と m_s 、 T_0 、 T_A の間に成り立つ関係式も同じものが得られている。ただ、SCR 理論では上に挙げた 4 つのパラメーターがすべて独立であると考えていたのに対し、今ここで説明したようにゆらぎの振幅が保存すると考えると式 (3.56) で与えられるような \bar{F}_1 、 T_0 、 T_A の間の関係が導かれ、独立なパラメーターは 1 つ減ることになる。表 6 に示したように多くの弱い強磁性体においてはこの関係式は良く成り立っているように思われる。

3.3.3 磁化率のスケーリング

磁化率の温度依存性を決める式 (3.61) から導かれる興味ある結論についてここで説明する。式 (3.61) を見ると、この方程式の温度依存性が T_0 で規格化された温度 $t = T/T_0$ だけで決まることが分かる。式 (3.61) は、もちろん次元や強磁性、反強磁性の違いによってその形は多少異なっている。しかし、もしそれらについて同じ状況を考えることにすると、それぞれの磁性体によってその磁化率の温度依存性が一見異なるように見えても、その温度依存性を T_0 で規格化した温度 t の関数としてみるとどれも全く同じように見える（普遍性が成り立つ）ことを意味している。つまり、磁化率の温度依存性についてスケーリングが成立することを意味する。このことについて以下にもう少し詳しく見ていくことにする。

p_{eff}/p_s vs t_c

弱い強磁性体では、転移温度より高温で観測される磁化率のキュリーワイス則に従う温度依存性から求めたキュリー定数から得られる、有効ボーア磁子数の値と、低温の自発磁化の値との比 p_{eff}/p_s は 1 に比べ大きな値をもつことが知られている。図 1 に示したように、弱い強磁性体を含めたいろいろな磁性体について常磁性磁化率から求めた $2S$ の値 p_c と基底状態での自発磁化 p_s との比 p_c/p_s を、 T_c に対してプロットするという実験の整理の仕方が Rhodes-Wohlfarth によって提案された。

もともとこのようなプロットを行うことについて何らかの理論的な根拠があったわけではない。その後 Takahashi は今述べた y と t の普遍的な関係に注目し、 p_{eff}/p_s の比の値が T_c ではなく、 t_c の普遍的な関数となることを示し、実験で求められた p_{eff}/p_s の値をむしろ、 t_c の関数としてプロットすることを主張した。以下に Takahashi の主張の理論的な根拠について説明する。

磁化率 χ がキュリーワイス則に従うことは、次のように表される。

$$(g\mu_B)^2 \chi = \frac{N_0 \mu_B^2 p_{\text{eff}}^2}{3k_B(T - T_c)} \quad (3.78)$$

一方、 $\chi = N_0/(2k_B T_A y)$ の関係 (式 (3.8)、(3.9)) を用いると次のように書き換えることができる。

$$\frac{\chi}{N_0} = \frac{1}{2k_B T_A y} = \frac{\mu_B^2 p_{\text{eff}}^2}{3(g\mu_B)^2 k_B (T - T_c)} \quad (3.79)$$

$$= \frac{p_{\text{eff}}^2}{12k_B T_0 (t - t_c)} \quad (3.80)$$

ここで、 p_s^2 と t_c との関係 (式 (3.66)) を用いると、上の関係はさらに次のように表すことができる (ここでは σ_s を p_s 、 σ_{eff} を p_{eff} と表している)。

$$p_{\text{eff}}^2 = \frac{12T_0(t - t_c)}{2T_A y} = 6 \frac{p_s^2}{4} \frac{(2 + \alpha)}{15C(\nu)t_c^\nu} \left(\frac{t - t_c}{y} \right) \quad (3.81)$$

$$(p_{\text{eff}}/p_s)^2 \sim \frac{2 + \alpha}{10C(\nu)} \frac{1}{(dy/dt)} \frac{1}{t_c^\nu} \quad (3.82)$$

式 (3.61) を解いて得られる y の t 依存性が、キュリーワイス則のような振る舞い、つまり $y \propto (t - t_c)$ が成り立てばその比例係数 (dy/dt) も普遍的な定数と考えることができる。実際前に述べたように y は広い範囲で t に比例するように変化するので

$$(p_{\text{eff}}/p_s)^2 \propto 1/t_c^\nu, \quad \nu = (3 + \alpha)/(2 + \alpha) \quad (3.83)$$

の関係が導かれ、この比例係数は個々の系によらない普遍的な定数で与えられる。

この結果によると、量子ゆらぎの支配的な系は $t_c = T_c/T_0 \ll 1$ が成り立つので一般に $(p_{\text{eff}}/p_s)^2 \gg 1$ が成り立ち、逆にハイゼンベルグモデルで記述されるような古典的なゆらぎが支配的な系では、 $T_c/T_0 \sim k_B T_c/J \sim 1$ が成り立つので $(p_{\text{eff}}/p_s)^2 \sim 1$ となることが分かる。この後者の性質は既にハイゼンベルグモデルでよく知られた性質であり、式 (3.83) は量子ゆらぎが支配的な系から古典ゆらぎの支配的な系までを一つのパラメータ t_c を媒介として統一的に磁化率のキュリーワイス則に従う温度依存性を記述できるという点からたいへん興味深い。

実際に様々な弱い強磁性体に対して NMR 測定等から T_0 を決定し、 p_{eff}/p_s を t_c に対してプロットした図を図 14、15 に示す。図 14、15 より様々な物質で $(p_{\text{eff}}/p_s)^2 \propto 1/t_c^\nu$ の曲線上にのることが示され、式 (3.83) から予想されたスケーリングが成り立っていることが分かる [16, 17, 18]。また逆に、磁化測定により有効磁気モーメント p_{eff} の値や自発磁化 p_s の値、臨界温度 T_c の値は比較的容易に求めることができるので、これらの値を使って上の関係式 (3.83) を用いることによりスピンのゆらぎの動的な性質である周波数分布の幅に関係する T_0 の値を評価することもできる。

磁化率のスケーリングの一方の極限として局在モーメント系で $(p_{\text{eff}}/p_s)^2 \sim 1$ となることを示したついでに、局在モーメント系で観測されるキュリーワイス則についてもここで用いたスピンのゆらぎの保存則の一つの極限として説明できることを示す。

$$\langle S_i^2 \rangle = S(S + 1) = \frac{3\hbar}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \coth \frac{\beta\hbar\omega}{2} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (3.84)$$

局在モーメント系では臨界温度 T_c 近傍で、ゆらぎの周波数に関する分布がほぼ $k_B T_c$ 程度の範囲に限られてしまうという特徴がある。こうした事情があると零点ゆらぎの寄与は熱ゆらぎに比べ無視でき、 $\coth(\beta\hbar\omega/2) \sim 2k_B T/\hbar\omega$ の近似を用いると

$$S(S + 1) = k_B T \frac{3}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \int_{-\infty}^\infty \frac{d\omega}{\pi} \frac{\text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega)}{\omega} = k_B T \frac{3}{N_0^2} \sum_{\mathbf{q}} \text{Re}\chi(\mathbf{q}, 0) \quad (3.85)$$

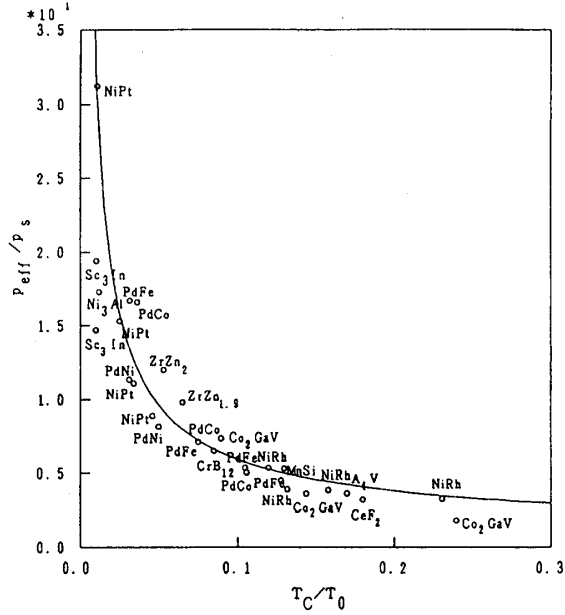


図 14: p_{eff}/p_s vs T_C/T_0 (実線は式 (3.81) の結果を示す。)

が成り立つことが示せる。

ゆらぎのエネルギー幅の温度依存性

遍歴磁性体、特に弱い強磁性体、反強磁性体の場合のスピンゆらぎのエネルギー幅の波数依存性が次の式で与えられることをすでに述べた。

$$\Gamma_q = \Gamma_0 q^\alpha (\kappa^2 + q^2) = \frac{2\pi k_B T_0}{\hbar} x^\alpha (y + x^2) \quad (3.86)$$

このエネルギー幅 Γ_q は、 y を通して温度依存性を示す。磁化率がキュリーワイス則にしたがう温度依存性を示すのであれば、この式から分かるように波数の値を決めたとき、幅 Γ_q の温度依存性は温度にほぼ比例するような依存性を示すことが期待される。その温度勾配の値は上の式を温度 T で微分することにより次のように求められる。

$$\frac{1}{x^\alpha} \frac{\partial \Gamma_q}{\partial T} = \frac{2\pi k_B}{\hbar} \frac{\partial y}{\partial T} \quad (3.87)$$

y の t 依存性は普遍的であることから、その微係数 $\partial y/\partial t$ も物質にはあまりよらず、次元や強磁性であるか反強磁性であるかといったことにより決まる普遍的な定数である。つまり Γ_q/x^α を温度 T でプロットしたときの傾きは、物質によらない普遍的なある一定の値になることが導かれる。特に反強磁性体の場合は $\alpha = 0$ であるため、 $\partial \Gamma_q/\partial T$ の値が物質などによらない定数であることになり特に興味がある。図 16 に遍歴電子反強磁性体である β -(Mn-Al) 系について Γ_q の温度依存性を示す [19]。サンプルが少ないこともあるのであまりはっきりしたことは言えないにしても、ここで示されている傾きは、理論で予想されている値とだいたいにおいてよい一致を示すことがわかっている。

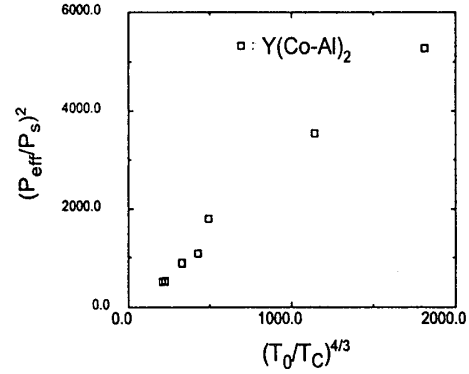


図 15: $(p_{eff}/p_s)^2$ vs $(T_0/T_C)^{4/3}$

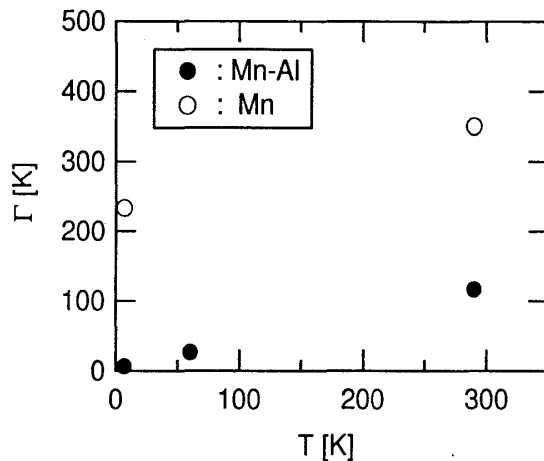


図 16: β -(Mn-Al) の Γ_q の温度依存性

3.4 結び

この講義ノートでは遍歴電子磁性について、特に 3 節ではスピンのゆらぎ $\langle S_i^2 \rangle$ が一定値に保存されると考えたときに導かれる結果について説明してきた。磁化過程および磁化率の温度変化を与える式を導き出し、磁化過程とスピンのゆらぎのパラメータの関係、キュリーワイス磁化率、スピンのゆらぎのエネルギー幅 T_0 で規格化した温度のもとでスケールリングが成り立つことなどを示した。これらの結果はこれまでに得られている実験結果とだいたいにおいて良く合っているように見える。

すでに述べたように、スピンのゆらぎが保存される考えると、弱い強磁性体、反強磁性体は量子ゆらぎが支配的な系であるということが出来る。量子ゆらぎについてはこれまでその重要性について、あまり明確な形で認識されることが少なかったように思える。しかし、実際に大きなゆらぎが存在していることになると、従来の考えとは少し違った見方をすることが必要とされる。とくに量子ゆらぎの影響を考慮することが遍歴電子磁性体の物性を理解する上で大きな意味をもつと思われる。この量子ゆらぎの重要性を再認識することにより新たな観点から、遍歴電子磁性の研究を含む磁性体の統一的な理解がさらに進展することが期待される。

ここで触れたこと以外にも説明したかったことはいろいろあったが、時間の制約もあり省略せざると得なかった。例えば、スピンのゆらぎによる磁気比熱や、磁気体積効果などについては全く触れることができなかった。また、最近 FeSi の非線形磁化過程の実験で興味ある結果が得られている [20]。自由エネルギーを磁化 M のべき乗で展開したときの 4 次の係数の符号は、この物質の半導体的なバンド構造を考慮すると単純には負の値となることが期待される。しかし予想に反して正の値が得られたことはこの講義で説明した基底状態を含む磁気的な性質にこれまで考えられた以上にゆらぎの効果が重要であることを示唆していただいたいへん興味深い。

参考文献

- [1] T. Moriya: *Spin Fluctuation in Itinerant-Electron Magnetism* (Springer-Verlag, 1985).
- [2] T. Moriya and A. Kawabata: J.Phys.Soc.Jpn. **34** (1973) 639; **35** (1973) 669.

- [3] T. Moriya and Y. Takahashi: J.Phys.Soc.Jpn. **45** (1978) 397; J. Phys. (Paris) **39 C** (1978) 6-1466.
- [4] Y. Takahashi: J.Phys.Soc.Jpn. **55** (1986) 3553.
- [5] H. Sasakura, K. Suzuki, and Y. Masuda: J.Phys.Soc.Jpn. **53** (1984) 352.
- [6] 永宮健夫：磁性の理論（吉岡書店、1987）
- [7] 川畑有郷：電子相関（丸善、1992）
- [8] 斯波弘行：固体の電子論（丸善、1996）
- [9] 芳田奎：磁性（岩波、1991）
- [10] T. Izuyama, D. J. Kim and R. Kubo: J.Phys.Soc.Jpn. **18** (1963) 1025.
- [11] A. Ishigaki, T. Moriya: J.Phys.Soc.Jpn. **67** (1998) 3924.
- [12] Y. Ishikawa, Y. Uemura, C. F. Majzak, G. Shirane and Y. Noda: Phys.Rev. **B31** (1985) 5884.
- [13] K. R. A. Ziebeck, H. Capellmann, P. J. Brown and J. G. Booth: Z.Phys. **48** (1982) 241.
- [14] H. Shiba and P. Pincus: Phys.Rev. **B5** (1972) 1966. H. Shiba: Prog.Theor.Phys. **48** (1972) 2171.
- [15] J. E. Hirsch: Phys.Rev. **B31** (1985) 4403.
- [16] K. Yoshimura, M. Takigawa, Y. Takahashi, H. Yasuoka, and Y. Nakamura: J.Phys.Soc.Jpn. **56** (1987) 1138.
- [17] K. Shimizu, H. Maruyama, H. Yamasaki, and H. Watanabe: J.Phys.Soc.Jpn. **59** (1990) 305.
- [18] R. Nakabayashi, Y. Tazuke, and S. Maruyama: J.Phys.Soc.Jpn. **61** (1992) 774.
- [19] M. Shiga, H. Nakamura, M. Nishi, and K. Kakurai: J.Phys.Soc.Jpn. **63** (1994) 1656.
- [20] K. Koyama, T. Goto, T. Kanomata, R. Note, and Y. Takahashi: J.Phys.Soc.Jpn. **69** (2000) 219.